



# Les carbones amorphes hydrogènes : observations, synthèse et caractérisation en laboratoire de poussières interstellaires

Marie Godard

## ► To cite this version:

Marie Godard. Les carbones amorphes hydrogènes : observations, synthèse et caractérisation en laboratoire de poussières interstellaires. Autre. Université Paris Sud - Paris XI, 2011. Français. NNT : 2011PA112134 . tel-00635907

**HAL Id: tel-00635907**

**<https://theses.hal.science/tel-00635907>**

Submitted on 26 Oct 2011

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



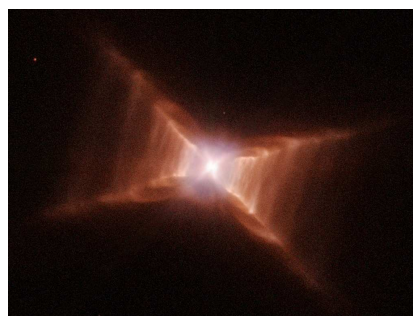
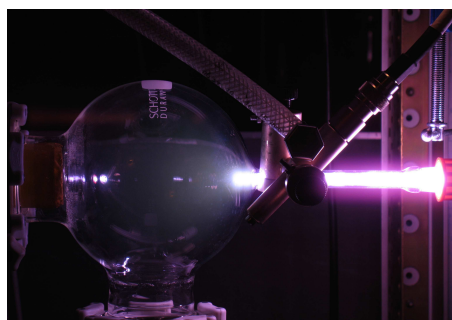
Ecole Doctorale Astronomie et Astrophysique d'Ile-de-France  
Institut d'Astrophysique Spatiale

## THESE

présentée pour obtenir le grade de Docteur de l'Université Paris-Sud 11  
Spécialité : Astrophysique

# Les carbones amorphes hydrogénés : observations, synthèse et caractérisation en laboratoire de poussières interstellaires

Marie GODARD



Thèse effectuée sous la direction d'Emmanuel Dartois

soutenue le 22 septembre 2011, devant le jury composé de :

Prof.	Guillaume Pineau des Forêts	Président	IAS, Orsay
Dr.	Christine Joblin	Rapportrice	IRAP, Toulouse
Prof.	Eric Quirico	Rapporteur	IPAG, Grenoble
Dr.	Vito Mennella	Examineur	OAC, Naples
Dr.	Guillermo Muñoz Caro	Examineur	CAB, Madrid
Dr.	Emmanuel Dartois	Directeur de Thèse	IAS, Orsay





Ecole Doctorale Astronomie et Astrophysique d'Ile-de-France

## THESE

présentée pour obtenir le grade de Docteur de l'Université Paris-Sud 11  
Spécialité : Astrophysique

# Les carbones amorphes hydrogénés : observations, synthèse et caractérisation en laboratoire de poussières interstellaires

Marie GODARD

Thèse effectuée à l'Institut d'Astrophysique Spatiale (IAS)  
Equipe Astrochimie et Origines  
Université Paris-Sud 11, Bât 121  
91405 Orsay Cedex  
FRANCE

sous la direction d'Emmanuel Dartois

Images de couverture

*A gauche* : photo du plasma permettant la production des a-C:H à l'IAS.

*A droite* : la nébuleuse du Rectangle Rouge (Hubble Space Telescope).





# Remerciements

Et voilà ! Je termine l'écriture de ces nombreuses pages par la tâche difficile mais essentielle de dire un grand MERCI à tous ceux qui m'ont soutenu, aidé et qui ont contribué à ce que ma thèse se passe dans des conditions aussi bonnes, du point de vue scientifique aussi bien que personnel. Ces trois années passées à l'Institut d'Astrophysique Spatiale m'ont beaucoup plu, je m'y suis très bien sentie et j'en garderai un excellent souvenir.

C'est évidemment Emmanuel que je voudrais, en tout premier lieu, remercier sincèrement. Je suis réellement convaincue que je n'aurais pu avoir un meilleur directeur de thèse que celui qu'il a été. J'ai conscience de la gentillesse et de la patience dont il a fait preuve, ainsi que du temps qu'il a toujours pris soin de m'accorder alors qu'il était bien souvent débordé. Je lui en suis très reconnaissante. J'ai vraiment apprécié de travailler avec lui, toujours dans la bonne humeur. Il a su me faire profiter de son expérience et de précieux conseils : il m'a par exemple transmis durant cette thèse quelques conseils sur une planche de surf, ou le virus de faire pousser des avocats, ... mais surtout la patience et la ténacité face à des expériences qui ne marchent pas toujours comme on le souhaite, la rigueur scientifique nécessaire à l'analyse de résultats expérimentaux et d'observations, ainsi que, je l'espère, beaucoup d'autres de ses nombreuses qualités scientifiques et humaines.

Du point de vue expérimental et technique, Dominique Deboffe puis Philippe Duret ont été d'une aide indispensable et très précieuse pour le développement et la réalisation des différents montages expérimentaux, ainsi que pour résoudre les nombreux problèmes techniques et logistiques inhérents à tout travail expérimental. Je les remercie tous les deux pour leur disponibilité. Il a été très agréable de travailler au quotidien avec eux. Je remercie aussi Vincent Guerrini, verrier au LATMOS, pour sa patience à fabriquer de nombreuses pièces sur mesure, parfois cassées par ma maladresse. Merci à Noel Coron, qui porte bien son prénom et nous a donné de bons conseils et a bien souvent sorti de ~~sa hotte~~ ses placards le matériel utile pour nous dépanner. L'avancement de ce travail expérimental a aussi été possible grâce à de nombreuses personnes du laboratoire : je tiens ainsi à remercier les personnes de l'atelier, du bureau d'étude, et des différents services techniques qui ont largement contribué à la réalisation des montages expérimentaux exploités dans cette thèse.

Je remercie les chercheurs des équipes "Astrochimie et Origines" et "Milieu interstellaire" — Louis d'Hendecourt, Rosario Brunetto, Donia Baklouti, Zahia Djouadi, Janet Borg, Alice Aléon, Anthony Jones, Alain Abergel, Laurent Verstraete, François Boulanger, Guillaume Pineau-des-Forêts, Vincent Guillet, Emilie Habart, Marc-Antoine Mivilles-Deschênes — pour leur accueil chaleureux parmi eux et les discussions enrichissantes qu'ils ont engendrées.

Je suis aussi très reconnaissante envers les différentes personnes avec qui j'ai eu la chance de travailler et collaborer : Rosario Brunetto, Thomas Pino (grâce à qui j'ai réellement découvert l'astrophysique de laboratoire au cours de mon stage de L3), Géraldine Féraud, Yvain Carpentier, Philippe Bréchnignac, Marin Chabot, Jean Duprat, Cécile Engrand (un de mes premiers

contacts avec le monde de la recherche lors de mon stage de 3<sup>e</sup>). C'est un vrai plaisir d'échanger et de travailler avec tout ce petit groupe, toujours dans une excellente ambiance, et je remercie vivement chacun d'entre eux pour leurs précieux conseils et encouragements, leur gentillesse et leur bonne humeur. Je remercie également Guillermo Muñoz Caro et Tom Geballe (merci notamment pour la nuit de Noël passée au sommet du Mauna Kea).

Je voudrais remercier les membres de mon jury d'avoir accepté d'en faire partie et d'avoir consacré du temps à examiner mon travail : Christine Joblin et Eric Quirico en tant que rapporteurs, Vito Mennella et Guillermo Muñoz Caro en tant qu'examinateurs, et Guillaume Pineau-des-Forêts, qui, quelques années après m'avoir fait découvrir l'astrophysique lors de mes premiers pas à la fac, a officiellement clôturé mes études lors de ma soutenance il y a deux semaines en tant que président de jury.

Si je me suis sentie si bien à l'IAS, c'est aussi grâce aux thésards et ancien thésards de ce laboratoire avec qui j'ai pu faire des pauses et discuter de tout et de rien. Je remercie notamment Manuel, Elisabetta, Nathalie, Pierre, Vincent et Morgane avec qui j'ai partagé un bureau et de très bons moments durant mon stage puis ma thèse, mais aussi Sophie, Cédric, Benjamin, Mathieu, Vaitua, John (m\*\*\*e pour ta soutenance Coco!), Eléonore, Aurélie, Heddy, les geeks des soirées LAN, Sihane et Paola. Je suis également reconnaissante envers les nombreuses personnes de l'IAS avec qui j'ai échangé des sourires quotidiens ou des discussions de couloir.

Une part non négligeable de mon temps et de mon énergie au cours de cette thèse a été consacrée à l'enseignement dans le cadre d'un monitorat à l'université Paris-Sud. Je voudrais donc remercier les enseignants-chercheurs et moniteurs avec qui j'ai eu l'occasion de travailler. Notamment, je remercie chaleureusement les enseignants du module PHYS102 de cours-TP-TD d'optique, et en particulier Christophe Balland, avec qui j'ai pu discuter et obtenir des conseils pour cette première expérience dans une salle de classe en étant de l'autre côté du bureau. Je suis aussi reconnaissante envers mes étudiants qui, dans l'ensemble, ont aussi contribué à ce que cette expérience d'enseignement ait été un vrai plaisir.

Je voudrais accorder ici une place à des "partenaires" importants de mon travail de tous les jours, accessoires indispensables tout au long de mes études, de ma thèse, et notamment lors de la rédaction de ce manuscrit : mes nombreux CD et leurs auteurs/compositeurs ont très souvent été une source d'énergie et de motivation supplémentaire durant ces longues années assise à mon bureau :-)

Je finis en remerciant ma famille qui m'a toujours fait entièrement confiance, m'a encouragée et soutenue tout au long de mes études. Je voudrais remercier de tout mon coeur Nico dont le soutien quotidien, les conseils, le réconfort et les encouragements qu'il m'a apportés ces dernières années à mes côtés ont été un moteur qui a contribué à m'amener jusqu'ici.

# Table des matières

<b>Remerciements</b>	<b>i</b>
<b>Introduction</b>	<b>1</b>
<b>I Contexte astrophysique : le milieu interstellaire et ses poussières</b>	<b>5</b>
<b>1 Le milieu interstellaire</b>	<b>7</b>
1.1 Introduction . . . . .	7
1.2 Un milieu interstellaire multi-phase . . . . .	8
1.2.1 Nuages denses . . . . .	8
1.2.2 Milieu diffus . . . . .	10
1.3 Sources d'énergie et processus d'altération . . . . .	11
1.3.1 Photons . . . . .	11
1.3.2 Rayons cosmiques . . . . .	11
1.3.3 Champ magnétique . . . . .	14
1.3.4 Chocs . . . . .	15
1.4 Cycle de vie du milieu interstellaire . . . . .	15
<b>2 Les poussières interstellaires</b>	<b>17</b>
2.1 Le rôle de la poussière dans le milieu interstellaire . . . . .	18
2.2 Différents types de matière interstellaire solide . . . . .	20
2.2.1 Composition . . . . .	20
2.2.2 Distribution de tailles et modèles de poussières . . . . .	23
2.3 Quelques observables et signatures spectrales observées dans le milieu interstellaire	23
2.3.1 Extinction interstellaire . . . . .	24
2.3.2 Emission de la poussière interstellaire . . . . .	30
2.3.3 Polarisation . . . . .	37
2.4 Formation et évolution de la poussière interstellaire . . . . .	37
2.4.1 Formation . . . . .	37
2.4.2 Evolution . . . . .	39
<b>3 Les carbones amorphes hydrogénés du milieu interstellaire</b>	<b>43</b>
3.1 Signatures spectrales dans l'infrarouge . . . . .	43
3.1.1 Bande d'absorption interstellaire à $3.4\ \mu\text{m}$ . . . . .	43
3.1.2 Contribution dans l'IR moyen : bandes d'absorption à $6.85$ et $7.25\ \mu\text{m}$ . .	47
3.1.3 En émission ? . . . . .	47
3.2 Distribution de cette composante de la poussière . . . . .	48

3.2.1	Observations dans le milieu interstellaire diffus de la Voie Lactée . . . . .	48
3.2.2	Absence dans les régions denses . . . . .	51
3.2.3	Détections extragalactiques . . . . .	52
3.3	Contraintes observationnelles sur la structure des a-C:H . . . . .	53
3.3.1	Rapport CH <sub>2</sub> /CH <sub>3</sub> . . . . .	53
3.3.2	Contribution des carbones aromatiques . . . . .	53
3.3.3	Hétéroatomes . . . . .	54
3.3.4	Contenu en hydrogène . . . . .	55
3.3.5	Structures proposées des a-C:H interstellaires . . . . .	58
3.4	Sous quelle forme ? . . . . .	59
3.4.1	Lien avec les silicates . . . . .	59
3.4.2	Mesure de polarisation . . . . .	59
3.5	Part importante de la poussière interstellaire . . . . .	59
3.6	Formation et évolution . . . . .	61
3.7	Analogues de laboratoire . . . . .	62

## II Observations de carbones amorphes hydrogénés interstellaires 65

4	Le milieu diffus en direction d'IRAS 18511+0146 : une bande à 3.4 $\mu\text{m}$ particulièrement profonde . . . . .	67
4.1	Introduction . . . . .	68
4.2	Observations et réduction des données . . . . .	68
4.3	Résultats . . . . .	71
4.3.1	Spectres observés : contributions des MIS diffus et denses . . . . .	71
4.3.2	La bande d'absorption à 3.47 $\mu\text{m}$ : la contribution des nuages denses . . . . .	72
4.4	Distance et extinction vers IRAS 18511+0146 . . . . .	76
4.4.1	Distance déduite de la rotation galactique . . . . .	76
4.4.2	Distance et extinction déduites de diagrammes couleur-couleur . . . . .	78
4.4.3	Autres arguments . . . . .	80
4.5	Discussion . . . . .	82
4.6	Conclusion . . . . .	85

## III Production et étude en laboratoire d'analogues de poussières interstellaires carbonées 87

5	Production expérimentale de carbones amorphes hydrogénés . . . . .	89
5.1	Gaz précurseur et système de pompage . . . . .	91
5.1.1	Hydrocarbures utilisés . . . . .	91
5.1.2	Ajout d'autres gaz . . . . .	92
5.1.3	Pompage et contrôle de la pression . . . . .	92

5.2	Réacteur plasma . . . . .	92
5.2.1	Cellule plasma . . . . .	92
5.2.2	Cavité micro-onde et plasma . . . . .	93
5.3	Echantillons produits . . . . .	94
5.3.1	Formation du film d'a-C:H . . . . .	94
5.3.2	Substrat . . . . .	95
5.3.3	Aspect du film déposé . . . . .	95
5.3.4	Différents types d'a-C:H produits . . . . .	95
<b>6</b>	<b>Caractérisation des a-C:H produits</b>	<b>99</b>
6.1	Avantages et principe de la spectroscopie . . . . .	99
6.2	Spectroscopie UV-visible . . . . .	100
6.2.1	Montage expérimental . . . . .	100
6.2.2	Transmission et coefficient d'absorption . . . . .	102
6.2.3	Gap optique . . . . .	102
6.3	Spectroscopie infrarouge . . . . .	105
6.3.1	Spectromètre infrarouge à transformée de Fourier . . . . .	105
6.3.2	Spectres . . . . .	106
6.3.3	Franges d'interférence . . . . .	111
6.4	Propriétés déduites des mesures spectroscopiques et d'autres études . . . . .	119
6.4.1	Estimation de l'indice de réfraction . . . . .	119
6.4.2	Fraction sp <sup>2</sup> /sp <sup>3</sup> . . . . .	120
6.4.3	Contenu en hydrogène et densité des a-C:H . . . . .	121
6.4.4	Coefficient d'absorption intégré sur la bande à 3.4 $\mu\text{m}$ . . . . .	121
<b>7</b>	<b>Photoluminescence des a-C:H. Implications pour l'émission rouge étendue</b>	<b>125</b>
7.1	Introduction . . . . .	125
7.2	Mesures de photoluminescence . . . . .	126
7.2.1	Le fluorimètre . . . . .	127
7.2.2	Diffuseur lambertien . . . . .	129
7.2.3	La sphère intégrante et utilisation d'un étalon de PL . . . . .	131
7.3	Détermination du rendement de PL absolu et intrinsèque . . . . .	132
7.3.1	Avec le fluorimètre . . . . .	132
7.3.2	Validation de la méthode avec la sphère intégrante . . . . .	136
7.4	Résultats . . . . .	137
7.4.1	Influence du gap optique $E_{04}$ . . . . .	139
7.4.2	Influence de la longueur d'onde d'excitation $\lambda_{exc}$ . . . . .	142
7.5	Discussion . . . . .	144
7.5.1	Spectres de photoluminescence . . . . .	144
7.5.2	Rendements de photoluminescence . . . . .	146
7.5.3	Excitation de la photoluminescence . . . . .	150

7.5.4	“Fatigue” et atténuation de la PL due à l’oxygène . . . . .	151
7.5.5	Photoluminescence des a-C:H dans les conditions interstellaires . . . . .	153
7.5.6	Résumé de la comparaison entre la PL des a-C:H et l’ERE . . . . .	155
7.6	Conclusion . . . . .	156
<b>8</b>	<b>Evolution des a-C:H sous l’effet des rayons cosmiques</b>	<b>159</b>
8.1	Introduction . . . . .	159
8.2	Experiences . . . . .	161
8.2.1	Echantillons étudiés . . . . .	161
8.2.2	Irradiation des échantillons . . . . .	163
8.3	Déshydrogénation induite par l’irradiation . . . . .	168
8.3.1	Le modèle de recombinaison . . . . .	168
8.3.2	Sections efficaces de destruction . . . . .	173
8.3.3	Contenu en hydrogène résiduel et volume de recombinaison . . . . .	177
8.4	Autres modifications observées des a-C:H irradiés . . . . .	180
8.5	Implications astrophysiques concernant la déshydrogénation . . . . .	184
8.5.1	Flux interstellaire des rayons cosmiques . . . . .	184
8.5.2	Taux d’ionisation . . . . .	186
8.5.3	Taux de destruction . . . . .	187
8.5.4	Evolution des C-H aliphatiques interstellaires due aux rayons cosmiques .	188
8.5.5	Contribution des ions lourds . . . . .	190
8.5.6	Implications d’un fort taux d’ionisation . . . . .	191
8.5.7	Evolution entre les phases diffuses et denses du milieu interstellaire . . .	192
8.6	Conclusion . . . . .	197
	<b>Conclusions</b>	<b>199</b>
	<b>Perspectives</b>	<b>203</b>
	<b>Annexes</b>	<b>205</b>
<b>A</b>	<b>Modèle optique de l’émission d’un film sur un substrat</b>	<b>209</b>
A.1	Emission par un dipôle électrique dans un milieu infini . . . . .	209
A.1.1	Polarisation du champ électrique . . . . .	209
A.1.2	Intensité énergétique dans un milieu infini . . . . .	212
A.2	Effets aux interfaces du film . . . . .	214
A.2.1	Le faisceau direct D . . . . .	215
A.2.2	Le faisceau réfléchi R . . . . .	217
A.2.3	Combinaison des faisceaux D et R . . . . .	218
A.2.4	Profil du rayonnement . . . . .	220
A.3	Coefficients de Fresnel . . . . .	223

---

A.3.1	Réflexion . . . . .	223
A.3.2	Transmission . . . . .	224
<b>B</b>	<b>Utilisation d'une sphère intégrante</b>	<b>225</b>
B.1	Principe de la mesure . . . . .	225
B.2	Calcul du rendement de PL avec une sphère intégrante . . . . .	227
<b>C</b>	<b>Résultats des irradiations avec un ajustement par une fonction exponentielle</b>	<b>229</b>
C.1	Ajustement par une fonction exponentielle . . . . .	229
C.2	Paramètres de la destruction déterminés par l'ajustement exponentiel . . . . .	229
<b>D</b>	<b>Publications</b>	<b>233</b>
	<b>Liste des Abréviations</b>	<b>237</b>
	<b>Liste des Figures</b>	<b>239</b>
	<b>Liste des Tableaux</b>	<b>243</b>
	<b>Bibliographie</b>	<b>245</b>





# Introduction

Le milieu interstellaire (MIS), c'est-à-dire l'espace qui sépare les étoiles au sein des galaxies, n'est pas vide, comme les astronomes l'ont longtemps pensé, et représente environ 10% de la masse totale des étoiles dans une galaxie. Ce milieu est en interaction permanente avec les étoiles qui y naissent, y vivent et y meurent. Il est essentiellement formé de gaz, mais aussi de molécules complexes, d'agrégats et de poussières. Les poussières ne représentent qu'environ 1% de la masse du gaz, mais elles gouvernent de nombreux processus physico-chimiques du milieu interstellaire, et jouent par conséquent un rôle très important dans la Galaxie. Elles sont responsables des effets les plus notables du milieu interstellaire (en absorbant et diffusant le rayonnement des étoiles qu'elles peuvent réémettre à plus grandes longueurs d'onde). L'étude de ces poussières interstellaires, de leur évolution, des processus physico-chimiques et des signatures spectrales qu'elles génèrent, est donc fondamentale pour la compréhension des problématiques astrophysiques et notamment du cycle de la matière dans une galaxie.

En plus de son observation dans le milieu interstellaire, l'étude de cette matière extraterrestre serait évidemment facilitée si l'on pouvait l'analyser *in situ*. La matière extraterrestre à laquelle il est aujourd'hui possible d'avoir accès en laboratoire ou par les sondes spatiales est celle présente sur Terre — les météorites trouvées ou dont on a vu la chute, et les micrométéorites récoltées en Antarctique —, dans son entourage proche — les grains interplanétaires (IDP pour *Interplanetary Dust Particles*) collectés dans la haute atmosphère —, ou dans le système solaire — analyse sur place ou retour d'échantillons de matière cométaire, astéroïdale ou de surface planétaire grâce à des missions spatiales. En revanche, les poussières interstellaires ne sont pas directement accessibles. Les informations que l'on peut obtenir les concernant proviennent uniquement de leur interaction avec le rayonnement que l'on est capable de détecter grâce aux télescopes spatiaux ou au sol. A partir de l'observation de cette matière interstellaire, il est possible de déduire des informations concernant sa composition, son évolution, son interaction avec le milieu environnant, ... Cependant, ces observations seules ne suffisent bien souvent pas à contraindre les processus physico-chimiques complexes à l'oeuvre dans le milieu interstellaire. Pour interpréter et compléter ces données d'observations, il est nécessaire de les associer à des modèles physiques ou chimiques élaborés sur la base d'expériences de laboratoire simulant ces processus interstellaires.

Il s'avère donc important de reproduire en laboratoire les propriétés spectrales des matériaux constituant le milieu interstellaire. On parle alors d'analogues de laboratoire des poussières interstellaires. Ces expériences permettent de simuler les conditions de formation et/ou d'évolution de composés interstellaires afin d'interpréter les observations astrophysiques. De plus, la comparaison des signatures spectrales observées avec les propriétés d'absorption et d'émission, dans les différents domaines spectraux, de matériaux produits sur Terre et susceptibles d'être présents dans le milieu interstellaire permet d'identifier et de quantifier les différents composés observés. L'étude d'analogues de poussières interstellaires en laboratoire, notamment par

spectroscopie, associée aux observations traçant l’interaction des grains interstellaires avec le rayonnement est donc essentielle.

On distingue deux grands types de poussières interstellaires réfractaires : les silicates et les poussières carbonées. Parmi les poussières carbonées, les carbones amorphes hydrogénés, appelés a-C:H ou HAC (*Hydrogenated Amorphous Carbons* en anglais) représentent une part importante des poussières du milieu interstellaire diffus de la Voie Lactée et d’autres galaxies. Ces matériaux interstellaires sont formés d’atomes de carbone et d’hydrogène, et sont observés au travers de bandes d’absorption infrarouges, caractéristiques des vibrations de leurs liaisons C-H notamment. Ce sont les observations de ces signatures spectrales, associées à la production et l’étude d’analogues en laboratoire, qui ont permis d’identifier les a-C:H à cette composante de la poussière. Cependant, il reste de nombreux aspects à comprendre et explorer concernant les caractéristiques de ces poussières dans le milieu interstellaire. Notamment, les observations de leurs signatures spectrales le long de différentes lignes de visée galactique soulèvent la question de la distribution spatiale des a-C:H interstellaires et de leur homogénéité dans le MIS diffus de la Galaxie. Une autre problématique concernant cette composante interstellaire est celle de son évolution puisque, contrairement au MIS diffus, dans les nuages interstellaires denses, ces signatures spectrales ne sont pas observées. De plus, les a-C:H émettent une lumière dans la gamme optique après avoir absorbé un rayonnement UV ou visible. Il est donc nécessaire de caractériser complètement cette photoluminescence devant faire partie de l’émission interstellaire.

Au cours de ces trois années de thèse effectuées à l’Institut d’Astrophysique Spatiale au sein de l’équipe “Astrochimie et Origines”, je me suis consacrée à l’étude de cette composante de la poussière interstellaire carbonée : les carbones amorphes hydrogénés. Afin d’explorer les problématiques évoquées ci-dessus, mon travail de thèse s’est porté conjointement sur l’analyse d’observations d’a-C:H interstellaires et sur un travail expérimental de production et d’étude d’analogues de laboratoire de ces poussières.

Dans une première partie présentant le contexte astrophysique de ces travaux de recherche, je présenterai dans le chapitre 1 le milieu interstellaire et les processus énergétiques le faisant évoluer. Le chapitre 2 est une introduction aux poussières interstellaires et notamment aux différentes signatures spectrales observées et résultant de l’interaction du rayonnement avec ces grains. Je me concentrerai sur les carbones amorphes hydrogénés interstellaires dans le chapitre 3, en présentant les informations acquises ces dernières années sur cette composante et les problématiques associées. Une deuxième partie de ce manuscrit concerne les observations infrarouges des a-C:H interstellaires effectuées avec le télescope Gemini North. Ces poussières ont été observées en direction de la source galactique IRAS 18511+0146 et de deux autres sources associées, au travers d’une de leurs bandes d’absorption. Nous verrons dans ce chapitre 4 que le milieu interstellaire diffus sondé par ces lignes de visée présente une bande d’absorption, caractéristique des a-C:H, dont la profondeur optique est particulièrement forte. La troisième partie du manuscrit est consacrée à la synthèse et l’étude en laboratoire de carbones amorphes hydrogénés, analogues de poussières interstellaires. L’expérience permettant de produire les échantillons d’a-C:H est décrite dans le chapitre 5. Je présenterai dans le chapitre

6 les premières caractérisations de ces analogues par la mesure de leur spectre infrarouge et UV-visible. Nous verrons les résultats des mesures et de l'analyse détaillée de la photoluminescence des a-C:H produits dans le chapitre 7. Je comparerai ces résultats à l'émission rouge étendue (ERE), une large bande d'émission observée dans le milieu interstellaire et dont les porteurs ne sont pas identifiés. Enfin, le chapitre 8 porte sur des expériences d'irradiation de ces analogues de poussières par des ions énergétiques. L'analyse des ces expériences permet de déduire les effets des rayons cosmiques sur cette composante interstellaire, et plus généralement de discuter l'évolution des a-C:H entre les phases interstellaires diffuses et denses. Je finirai par une conclusion et une brève mise en perspective.



## Première partie

### Contexte astrophysique : le milieu interstellaire et ses poussières



# Le milieu interstellaire

---

## Sommaire

<b>1.1</b>	<b>Introduction</b>	<b>7</b>
<b>1.2</b>	<b>Un milieu interstellaire multi-phase</b>	<b>8</b>
1.2.1	Nuages denses	8
1.2.2	Milieu diffus	10
<b>1.3</b>	<b>Sources d'énergie et processus d'altération</b>	<b>11</b>
1.3.1	Photons	11
1.3.2	Rayons cosmiques	11
1.3.3	Champ magnétique	14
1.3.4	Chocs	15
<b>1.4</b>	<b>Cycle de vie du milieu interstellaire</b>	<b>15</b>

---

## 1.1 Introduction

Le milieu interstellaire (MIS) est, comme son nom l'indique, formé par l'ensemble de l'espace situé entre les étoiles et qui constitue la majorité du volume occupé par une galaxie. Ce milieu est très peu dense ( $\sim 1$  particule par  $\text{cm}^3$  en moyenne<sup>1</sup>) et est constitué de gaz et de poussières. Compte tenu de cette faible densité, le milieu interstellaire ne représente environ que 5 à 10% de la masse visible de notre Galaxie. Il est composé d'hydrogène (90% en nombre d'atomes, 70% en masse), d'hélium (10% en nombre d'atomes, 28% en masse), et le reste des éléments (C, N, O, Mg, Si, Fe, ...) ne représente que 2% de la masse du MIS (0.1% en nombre d'atomes). Ces éléments se trouvent sous forme d'espèces gazeuses ou solides. La phase solide du milieu interstellaire sera décrite plus en détails dans le chapitre 2. Cette introduction au milieu interstellaire est inspirée des ouvrages de [Lequeux 2002] et [Tielens 2005].

---

1. à comparer par exemple avec les  $2.5 \cdot 10^{19}$  particules/ $\text{cm}^3$  de l'air (à 1 bar et 20°C), ou l'ultravide, un vide expérimental poussé ( $< 10^{-7}$  mbar), qui contient encore de l'ordre de  $10^9$  molécules/ $\text{cm}^3$ .



Phase du MIS	Densité ( $\text{cm}^{-3}$ )	Température (K)	Volume (% du volume du MIS galactique)
Milieu ionisé chaud (HIM)	$< 10^{-1}$	$10^5 - 10^7$	20 - 50%
Milieu ionisé tiède (WIM)	$\sim 0.1$	$10^3 - 10^4$	$\sim 20\%$
Milieu neutre tiède (WNM)	0.1 - 10	$10^3 - 10^4$	30 - 60%
Milieu neutre froid (CNM)	$1-10^3$	10 - 100	1 - 5%
Nuage moléculaire (MC)	$\gtrsim 10^2$	5 - 50	1%

TABLE 1.1 – **Caractéristiques physiques des différentes phases du milieu interstellaire.**

## 1.2 Un milieu interstellaire multi-phase

Le milieu interstellaire d’une galaxie n’est pas homogène. Il est structuré sur une très grande gamme d’échelles spatiales et varie largement d’un endroit à l’autre, notamment en termes de densité, de température et d’état d’ionisation. On distingue différentes phases du milieu interstellaire, caractérisées par des propriétés physiques et des traceurs spécifiques. Ainsi, on distingue par exemple les régions denses et diffuses, ou les milieux moléculaires, atomiques et ionisés. Initialement, [McKee & Ostriker 1977] ont décrit un modèle à 3 phases. Aujourd’hui, on distingue le plus souvent 5 phases interstellaires différentes. Une représentation schématique de ces différentes phases du milieu interstellaire et de leurs caractéristiques est décrite ci-dessous ainsi que dans le Tableau 1.1. Il faut cependant noter que cette description n’est en fait qu’une vision simplifiée d’une réalité complexe, où le MIS est un milieu turbulent, dont les différentes phases s’entremêlent partiellement les unes avec les autres, agitées notamment par des vents stellaires et des explosions de supernovae.

### 1.2.1 Nuages denses

#### Nuages moléculaires (MC pour *Molecular Clouds*)

Cette phase représente une faible fraction du volume du MIS ( $\sim 1\%$ ) mais une fraction importante en masse (30 à 60% de la masse du MIS galactique). Dans ces régions denses (de l’ordre de  $10^3$  particules/ $\text{cm}^3$ ) et confinées, essentiellement observées dans les bras spiraux ainsi que dans l’anneau moléculaire de la Galaxie, le rayonnement stellaire est écranté, permettant ainsi la formation de molécules. Le gaz moléculaire est en majorité composé de  $\text{H}_2$ , mais du fait de l’absence de transitions fortes, c’est le CO, au travers de raies de transitions rotationnelles, qui est le traceur le plus fréquemment utilisé pour observer le gaz moléculaire interstellaire. De nombreuses autres espèces, plus ou moins complexes, existent dans ces nuages moléculaires (voir la liste des molécules interstellaires et circumstellaires détectées dans le tableau 1.2). Ces phases froides (quelques dizaines de kelvins tout au plus) se présentent sous forme de nuages de quelques dizaines de parsecs, gravitationnellement liés. Ils peuvent s’effondrer sur eux-mêmes par gravité ou sous l’effet de forces extérieures (explosion de supernova, champ magnétique,

2 atomes	3 atomes	4 atomes	5 atomes	6 atomes	7 atomes	8 atomes	9 atomes	$\geq 10$ atomes
<u>H<sub>2</sub></u>	<u>H<sub>2</sub>O</u>	<u>NH<sub>3</sub></u>	<u>CH<sub>4</sub></u>	<u>CH<sub>3</sub>OH</u>	CH <sub>2</sub> CHOH	<u>C<sub>6</sub>H<sub>2</sub></u>	(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> O	(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> CO
<u>CO</u>	<u>H<sub>2</sub>S</u>	<u>H<sub>2</sub>CO</u>	<u>SiH<sub>4</sub></u>	CH <sub>3</sub> SH	c-C <sub>2</sub> H <sub>4</sub> O	CH <sub>3</sub> OCHO	CH <sub>3</sub> CH <sub>2</sub> CN	HOCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> OH
<u>SiC</u>	<u>HCN</u>	H <sub>2</sub> CS	<u>CH<sub>2</sub>NH</u>	<u>C<sub>2</sub>H<sub>4</sub></u>	CH <sub>3</sub> CHO	CH <sub>2</sub> OHCHO	CH <sub>3</sub> CH <sub>2</sub> OH	CH <sub>3</sub> CH <sub>2</sub> CHO
<u>CP</u>	<u>HNC</u>	C <sub>2</sub> H <sub>2</sub>	<u>NH<sub>2</sub>CN</u>	<u>HC<sub>4</sub>H</u>	<u>CH<sub>3</sub>CCH</u>	CH <sub>3</sub> C <sub>3</sub> N	<u>CH<sub>3</sub>C<sub>4</sub>H</u>	CH <sub>3</sub> C <sub>5</sub> N
<u>CS</u>	<u>CO<sub>2</sub></u>	<u>HNCO</u>	<u>CH<sub>2</sub>CO</u>	<u>CH<sub>3</sub>CN</u>	CH <sub>3</sub> NH <sub>2</sub>	CH <sub>3</sub> COOH	<u>HC<sub>7</sub>N</u>	<u>HC<sub>9</sub>N</u>
<u>NO</u>	SO <sub>2</sub>	HNCS	<u>HCOOH</u>	CH <sub>3</sub> NC	CH <sub>2</sub> CHCN	CH <sub>2</sub> CHCHO	<u>C<sub>8</sub>H</u>	CH <sub>3</sub> C <sub>6</sub> H
<u>NS</u>	<u>MgCN</u>	<u>H<sub>3</sub>O<sup>+</sup></u>	<u>HC<sub>3</sub>N</u>	NH <sub>2</sub> CHO	<u>HC<sub>5</sub>N</u>	CH <sub>2</sub> CCHCN	<u>C<sub>8</sub>H<sup>-</sup></u>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> OCHO
<u>SO</u>	<u>MgNC</u>	<u>c-SiC<sub>3</sub></u>	<u>HC<sub>2</sub>NC</u>	HC <sub>2</sub> CHO	<u>C<sub>6</sub>H</u>	<u>C<sub>7</sub>H</u>	CH <sub>3</sub> CONH <sub>2</sub>	<u>C<sub>6</sub>H<sub>6</sub></u>
HCl	<u>NaCN</u>	C <sub>3</sub> S	<u>c-C<sub>3</sub>H<sub>2</sub></u>	HC <sub>3</sub> NH <sup>+</sup>	<u>C<sub>6</sub>H<sup>-</sup></u>	NH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CN	CH <sub>2</sub> CHCH <sub>3</sub>	C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> CN
<u>NaCl</u>	N <sub>2</sub> O	H <sub>2</sub> CN	<u>l-C<sub>3</sub>H<sub>2</sub></u>	<u>HC<sub>4</sub>N</u>		<u>HC<sub>6</sub>H</u>		HC <sub>11</sub> N
<u>KCl</u>	NH <sub>2</sub>	<u>c-C<sub>3</sub>H</u>	CH <sub>2</sub> CN	<u>C<sub>5</sub>N</u>				<u>C<sub>60</sub></u>
<u>AlCl</u>	<u>OCS</u>	<u>l-C<sub>3</sub>H</u>	H <sub>2</sub> COH <sup>+</sup>	<u>C<sub>5</sub>H</u>				<u>C<sub>70</sub></u>
<u>AlF</u>	CH <sub>2</sub>	<u>HCCN</u>	<u>SiC<sub>4</sub></u>	<u>l-H<sub>2</sub>C<sub>4</sub></u>				
<u>PN</u>	<u>HCO</u>	CH <sub>3</sub>	<u>C<sub>5</sub></u>	<u>C<sub>5</sub>N<sup>-</sup></u>				
<u>SiN</u>	C <sub>3</sub>	<u>C<sub>3</sub>N</u>	<u>HNC<sub>3</sub></u>	c-H <sub>2</sub> C <sub>3</sub> O				
<u>SiO</u>	<u>C<sub>2</sub>H</u>	C <sub>3</sub> O	<u>C<sub>4</sub>H</u>	CH <sub>2</sub> CNH				
<u>SiS</u>	C <sub>2</sub> O	HCNH <sup>+</sup>	<u>C<sub>4</sub>H<sup>-</sup></u>					
<u>NH</u>	<u>C<sub>2</sub>S</u>	<u>HOCO<sup>+</sup></u>	CNCHO					
<u>OH</u>	<u>AINC</u>	<u>C<sub>3</sub>N<sup>-</sup></u>						
<u>C<sub>2</sub></u>	HNO	HCNO						
<u>CN</u>	<u>SiCN</u>	HSCN						
<u>HF</u>	<u>N<sub>2</sub>H<sup>+</sup></u>	HOCN						
FeO	<u>SiNC</u>	<u>PH<sub>3</sub></u>						
LiH	<u>c-SiC<sub>2</sub></u>	H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>						
<u>CH</u>	<u>HCO<sup>+</sup></u>							
<u>CH<sup>+</sup></u>	<u>HOC<sup>+</sup></u>							
<u>CO<sup>+</sup></u>	HCS <sup>+</sup>							
SO <sup>+</sup>	H <sub>3</sub> <sup>+</sup>							
SH	<u>OCN<sup>-</sup></u>							
O <sub>2</sub>	<u>HCP</u>							
N <sub>2</sub>	<u>CCP</u>							
CF <sup>+</sup>	<u>KCN</u>							
<u>PO</u>	H <sub>2</sub> Cl <sup>+</sup>							
<u>AlO</u>	<u>H<sub>2</sub>O<sup>+</sup></u>							
<u>CN<sup>-</sup></u>	<u>AlOH</u>							
SH <sup>+</sup>	<u>FeCN</u>							
<u>OH<sup>+</sup></u>								

TABLE 1.2 – Liste des molécules ou radicaux observés à ce jour dans les milieux interstellaires et circumstellaires. Cette liste combine toutes les observations faites en UV, visible, IR et millimétrique. Les espèces détectées à la fois dans des milieux interstellaires et circumstellaires sont en vert, celles détectées uniquement dans des environnements circumstellaires sont en rouge, et celles observées dans des galaxies externes sont soulignées. La majorité de ces espèces est observée en phase gazeuse. Les molécules qui ont été observées en phase solide apparaissent en gras. Ce tableau est adapté de [http://www.astrochymist.org/astrochymist\\_ism.html](http://www.astrochymist.org/astrochymist_ism.html), de <http://www.astro.uni-koeln.de/cdms/molecules>, ainsi que de <http://www.obs.u-bordeaux1.fr/pcmi/molecules/table-mol.pdf>.

...) et se fragmenter pour former des coeurs denses qui, s'ils sont suffisamment massiques, deviendront des sites de formation stellaire. Certains de ces nuages ont une masse très importante ( $> 10^5 M_\odot$ ), on parle dans ce cas de nuages moléculaires géants (GMC pour *Giant Molecular Cloud*), dans lesquels des amas d'étoiles vont pouvoir se former.

### 1.2.2 Milieu diffus

#### Milieu neutre froid (CNM pour *Cold Neutral Medium*)

Cette composante des nuages interstellaires diffus, localisée essentiellement dans le plan galactique, est présente autour des nuages denses et sous forme de filaments. L'hydrogène y étant principalement atomique, cette phase est notamment observée grâce à l'absorption de la raie à 21 cm due à la structure hyperfine de l'hydrogène neutre atomique (gaz HI). Les régions les plus denses du CNM peuvent contenir des molécules et sont appelées nuages translucents.

#### Le milieu internuage : milieu neutre tiède (WNM pour *Warm Neutral Medium*) et milieu ionisé tiède (WIM pour *Warm Ionized Medium*)

Ces régions diffuses (moins de 10 particules/cm<sup>3</sup>) et chaudes (quelques milliers de degrés) constituent une partie importante du volume et environ 10% de la masse du milieu interstellaire. Dans la représentation simple de "structure en oignons" qu'on peut avoir du MIS et de ces différentes composantes, le milieu internuage correspond à l'enveloppe la plus extérieure autour des nuages denses. La séparation entre le WNM et le WIM n'est pas franche et ces phases ne diffèrent vraiment que par leur fraction d'ionisation de l'hydrogène. Elles sont tracées respectivement par l'émission de la raie HI à 21 cm et par l'émission de la raie de recombinaison H $\alpha$  à 656 nm. Ces phases WNM et WIM peuvent aussi correspondre à des régions plus localisées et plus denses ( $10^2 - 10^4 \text{ cm}^{-3}$ ) que ce qui est indiqué dans la table 1.1 lorsqu'elles sont associées aux régions de photodissociation et régions H II autour d'étoiles jeunes proches.

#### Le gaz coronal : milieu ionisé chaud (HIM pour *Hot Ionized Medium*)

Entièrement ionisée et très peu dense ( $< 0.1 \text{ ions/cm}^3$ ), cette phase occupe une fraction importante du volume, située notamment dans le halo de la Galaxie. Sa fraction de masse est par contre négligeable. Ce plasma est chauffé à de hautes températures (de l'ordre du million de degrés) par les ondes de chocs issues de supernovae et de vents stellaires violents. Ces fortes températures rendent cette phase observable dans le domaine des rayons X et UV, notamment au travers de raies d'espèces fortement ionisées.

Dans la suite de ce manuscrit, on distinguera surtout les nuages denses du milieu interstellaire diffus, et l'on s'intéressera plus particulièrement au milieu diffus formé par le CNM et le milieu internuage.

## 1.3 Sources d'énergie et processus d'altération

En plus des “ingrédients” interstellaires que sont le gaz et les poussières, d'autres éléments et processus viennent compléter ce qui constitue et fait évoluer le milieu interstellaire. Les photons, rayons cosmiques, chocs et champ magnétique sont donc, entre autres, des sources d'énergie et d'altération essentielles au milieu interstellaire, participant à son évolution, sa dynamique et sa structuration.

### 1.3.1 Photons

Des photons de toutes énergies sont présents dans le milieu interstellaire et sont en interaction avec la matière qui le compose. On considère que la composante galactique moyenne du rayonnement électromagnétique a une densité d'énergie totale d'environ  $1 \text{ eV/cm}^3$ . Le rayonnement électromagnétique extragalactique est principalement composé du rayonnement de fond diffus cosmologique (CMB pour *Cosmic Microwave Background*, corps noir à 2.7 K) qui apporte une contribution aux longueurs d'onde millimétriques et submillimétriques. Cette composante extragalactique interagit cependant assez peu avec le milieu interstellaire. Le rayonnement galactique est dominé par le rayonnement stellaire et par l'émission des poussières. Les étoiles émettent, selon leur type spectral, des photons situés principalement dans l'UV, le visible et l'infrarouge proche. Les poussières, quant à elles, émettent surtout dans l'infrarouge moyen et lointain.

Ce rayonnement électromagnétique varie en fonction de l'endroit où l'on se trouve (proximité et type des étoiles environnantes, opacité du milieu considéré, ...). On considère cependant un champ de rayonnement interstellaire moyen, appelé ISRF pour *Interstellar Standard Radiation Field*, qui, lorsque l'on se trouve assez loin d'une source particulière, est la résultante de tous les processus d'émission galactique et extragalactique. L'ISRF est utilisé pour représenter le champ de rayonnement dans le milieu interstellaire diffus. Un spectre d'ISRF est donné par les travaux de [Mathis *et al.* 1983] (Fig. 1.1) pour différentes distances galactocentriques, à partir d'observations dans la cavité solaire. Dans les nuages moléculaires, le rayonnement UV et visible extérieur au nuage, produit par les étoiles environnantes, ne peut pas pénétrer dans les régions les plus denses (caractérisées par des extinctions visuelles  $A_V > 3$ ). Un rayonnement UV interne aux nuages moléculaires est généré par le passage de rayons cosmiques (cf. paragraphe suivant).

### 1.3.2 Rayons cosmiques

Les rayons cosmiques sont des particules (ions et électrons) de diverses énergies, principalement relativistes. Ils sont constitués de protons ( $\sim 90\%$ ), d'hélium ( $\sim 8\%$ ) et d'éléments plus lourds ( $\sim 2\%$ ) comme notamment les noyaux de Fe. Les électrons sont environ 100 fois moins nombreux que les protons. Ces abondances ne suivent pas tout à fait les abondances solaires, résultant de conséquences de l'origine et de la propagation de ces éléments. La densité totale du rayonnement cosmique est aussi de l'ordre de  $1 \text{ eV/cm}^3$ . Ces particules peuvent atteindre des

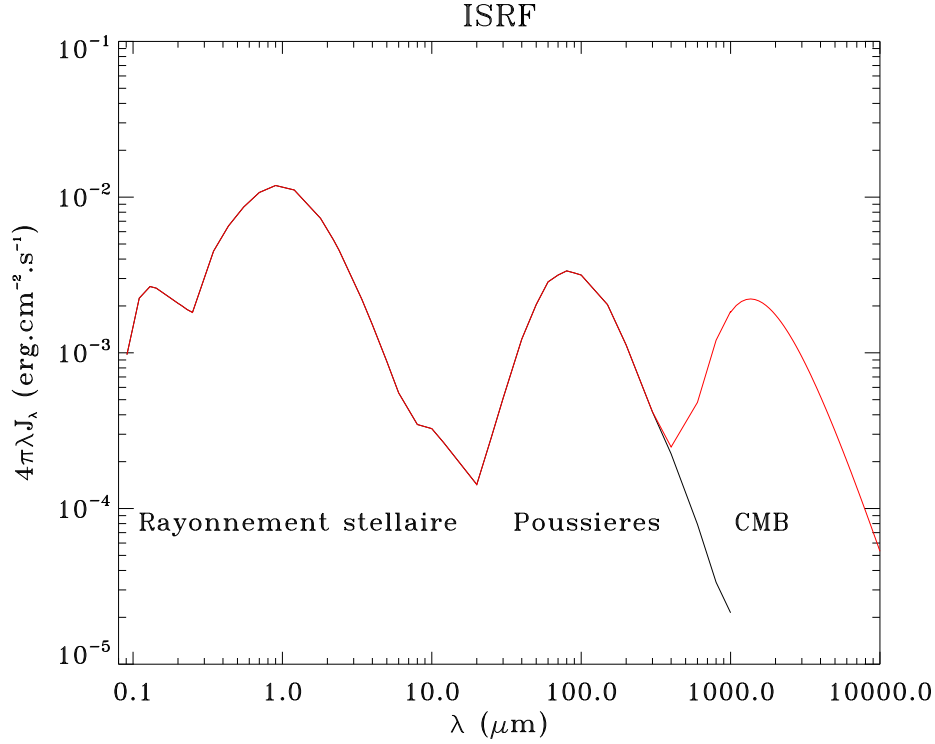


FIGURE 1.1 – **Champ de rayonnement interstellaire ISRF.** Ce spectre d'ISRF (en rouge) est celui donné par [Mathis *et al.* 1983] à une distance galactocentrique de 10 kpc (en noir) auquel est ajouté la contribution du CMB, c'est-à-dire un spectre de corps noir à 2.7 K.

énergie de l'ordre de  $10^{20}$  eV mais le flux correspondant est alors très faible (de l'ordre d'une particule par  $\text{km}^2$  et par siècle). Le flux de particules est environ de 1 particule/ $\text{cm}^2/\text{s}$  autour de 1 GeV par nucléon (GeV/n), mais décroît de manière importante pour des énergies plus fortes. Dans la suite du manuscrit, on ne considérera pas les particules de très haute énergie ( $E > 10$  GeV/n) à cause d'une part de ce faible flux, mais aussi car nous verrons que les effets des rayons cosmiques explorés dans cette thèse sont moindres dans cette gamme d'énergie. Les rayons cosmiques auxquels nous nous intéressons ici sont d'origine galactique, et leur accélération résulte probablement des chocs provenant des explosions de supernovae [Hörandel 2008]. Le rayonnement cosmique a une distribution quasiment isotrope dans la Galaxie. Les éléments lourds proviennent probablement de l'accélération des grains interstellaires dans les chocs et leur érosion par les atomes du gaz. Les éléments ainsi libérés sont aussi accélérés.

La distribution des rayons cosmiques reçus et mesurés au niveau de la Terre diffèrent de ceux se propageant dans le milieu interstellaire, principalement à basse énergie, à cause de ce que l'on appelle la modulation solaire. En effet, à l'intérieur de la cavité solaire, le vent solaire et le champ magnétique issu du Soleil empêchent les particules de plus basse énergie d'entrer dans l'héliosphère ou les ralentissent beaucoup. On observe d'ailleurs une anti-corrélation entre le flux de rayons cosmiques observé et l'activité solaire. Seules les particules d'énergies supérieures

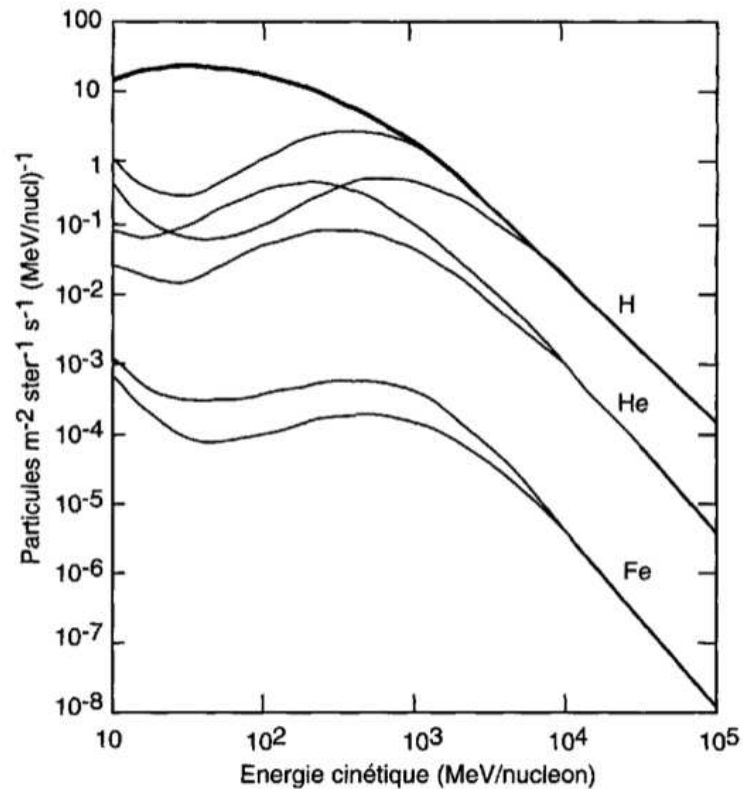


FIGURE 1.2 – **Distribution en énergie des rayons cosmiques et modulation solaire.** Les spectres d'énergie des noyaux d'hydrogène, d'hélium et de fer observés pour une activité solaire minimum et maximum (courbes hautes et basses, respectivement) sont représentés et illustrent la modulation solaire. Les remontées observées pour  $E < 100$  MeV/n correspondent aux particules d'origine solaire. La courbe plus épaisse est une estimation du spectre des protons dans le MIS, c'est-à-dire sans modulation solaire. Cette figure est tirée de [Lequeux 2002].

à quelques GeV/n ne sont pas affectées par la modulation solaire, et en dessous de 100 MeV/n, le flux de rayons cosmiques est fortement réduit (Fig. 1.2). Le champ magnétique terrestre influence aussi la distribution d'énergie des rayons cosmiques. Les particules qui parviennent au voisinage de la Terre interagissent avec la haute atmosphère et produisent des neutrons. Celles de très hautes énergies produisent des gerbes de particules secondaires détectables jusqu'au sol. Certaines expériences, comme celle menée grâce à l'observatoire Auger, permettent de détecter et d'étudier ces particules. Ces effets montrent qu'il est difficile de bien connaître le flux de rayons cosmiques interstellaires d'énergie inférieure à quelques centaines de MeV par nucléons (MeV/n). Les sondes Voyager 1 et 2, lancées par la NASA en 1977, devraient franchir l'héliopause, frontière entre l'héliosphère et le milieu interstellaire, d'ici quelques années. Des informations sur les rayons cosmiques hors de portée de la modulation solaire pourront alors être obtenues. Les données de Pioneer et Voyager ont cependant déjà permis de mieux

comprendre les effets de la modulation solaire [Webber 1998]. Le spectre des rayons cosmiques interstellaires (c'est-à-dire leur distribution en énergie) n'est pas celui produit au niveau des sites d'accélération. En effet, il est modifié lors de la propagation des particules dans la Galaxie par interaction avec le MIS. Un des modèles les plus couramment utilisés pour décrire la propagation des rayons cosmiques est celui de la "boîte poreuse" (ou *leaky box* en anglais) dans lequel des sources sont distribuées de manière homogène dans la Galaxie, et les particules énergétiques sont confinées dans la boîte représentant la Galaxie avec une certaine probabilité de s'en échapper. D'autres modèles plus élaborés ont aussi été développés, comme par exemple celui décrit par le code GALPROP [Moskalenko *et al.* 2002].

Le rayonnement cosmique participe au chauffage et à l'ionisation du milieu interstellaire, notamment des régions denses où les photons ne peuvent pas pénétrer. Le degré d'ionisation des régions dites neutres est donc faible, mais non nul, ce qui joue un grand rôle dans la physique et la chimie de ces milieux. L'observation d'espèces ionisées comme  $H_3^+$  dans les nuages denses et la détermination de leur abondance permettent d'estimer le taux d'ionisation de l'hydrogène atomique et moléculaire par les rayons cosmiques, et donc de contraindre le flux de particules de basse énergie (car la section efficace d'ionisation est plus forte autour de 1-100 keV/n) [Padovani *et al.* 2009]. Dans les nuages denses où le rayonnement stellaire ne peut pas pénétrer, les rayons cosmiques, en interagissant avec les molécules d'hydrogène, génèrent un rayonnement UV interne [Prasad & Tarafdar 1983] à l'origine d'une riche photochimie.

Plus de détails concernant les rayons cosmiques, notamment leur distribution en énergie, l'abondance de chaque élément, le taux d'ionisation et leurs effets sur certains types de poussières, seront discutés dans le chapitre 8.

### 1.3.3 Champ magnétique

Le champ magnétique interstellaire est de l'ordre de quelques microgauss ( $\sim 5 \mu\text{G}$  dans le voisinage solaire [Heiles & Troland 2005]) et est désordonné. A cette composante désordonnée s'ajoute un champ magnétique ordonné, plus faible ( $\sim 1.5 \mu\text{G}$  dans le voisinage solaire), qui semble suivre la géométrie des bras spiraux de la Galaxie. La densité d'énergie du champ magnétique total est une fois encore de l'ordre de  $1 \text{ eV}/\text{cm}^3$ . Cette équipartition entre ces différentes composantes résulte du transfert efficace de l'énergie entre elles et montre que chacune a son importance et ne peut être complètement négligée.

Le champ magnétique joue un rôle important pour le milieu interstellaire. Une composante de pression résultant de champ magnétique s'ajoute à la pression des rayons cosmiques et à la pression cinétique, s'opposant ainsi à l'effondrement gravitationnel du disque galactique. Le champ magnétique participe donc à la détermination de la distribution verticale du gaz. La présence d'un champ  $\vec{B}$  non nul et l'alignement d'une partie de la poussière provoque une polarisation de la lumière. Il permet aussi le confinement des rayons cosmiques dans la Galaxie. A plus petite échelle, le champ magnétique joue un rôle important dans la fragmentation et l'effondrement des nuages interstellaires.



### 1.3.4 Chocs

Les chocs sont créés dans le milieu interstellaire par une violente augmentation de pression, qui produit des mouvements à une vitesse supersonique. Ils interviennent dans beaucoup de situations du milieu interstellaire. Des ondes de choc sont produites par exemple par les restes de supernovae ou par les jets moléculaires issus des étoiles en formation.

Une onde de choc accélère, comprime et chauffe le milieu dans lequel elle se propage. Le passage de chocs interstellaires a des répercussions importantes sur la dynamique et la chimie des milieux traversés. De tels chocs peuvent contribuer au chauffage du MIS, provoquer des dissociations et ionisations collisionnelles et engendrer des réactions chimiques qui n'auraient pas pu avoir lieu sans le passage de ces chocs. Les grains de poussières peuvent être érodés et fragmentés par le passage de telles ondes. La compression d'un nuage induite par un choc peut déclencher l'effondrement de celui-ci, menant à la formation de nouvelles étoiles. De plus, c'est dans les ondes de choc issues des restes de supernovae que l'on pense que les rayons cosmiques sont accélérés.

## 1.4 Cycle de vie du milieu interstellaire

Le milieu interstellaire n'est statique ni dans l'espace ni dans le temps, il est en constante interaction avec son environnement. Les différents éléments qui le constituent ne sont pas indépendants les uns des autres, mais interagissent sans cesse entre eux, faisant évoluer une phase en une autre. Le cycle du milieu interstellaire est aussi celui des étoiles et décrit finalement l'évolution de la matière dans la Galaxie (schématisé sur la Fig. 1.3).

La matière explore les différentes phases interstellaires décrites à la section 1.2. Le milieu diffus devient par endroit gravitationnellement instable et forme alors des régions plus denses. Lorsqu'un nuage interstellaire atteint une masse critique (la masse de Jeans, dépendante de la température et de la densité), la force de pression (agitation thermique, turbulence, champ magnétique, ...) ne compense plus les effets de la gravité et le nuage se contracte par effondrement gravitationnel. La fragmentation du nuage mène à la formation de coeurs de plus en plus denses où l'énergie gravitationnelle est convertie en énergie thermique. A cause de l'élévation de température, la protoétoile qui se forme au centre d'un coeur dense, rayonne à des énergies de plus en plus fortes. Lorsque la température et la pression deviennent telles que les réactions de fusion de l'hydrogène se déclenchent, une nouvelle étoile vient de naître. L'énergie libérée par ces réactions permet à l'étoile d'être stable et la contraction s'arrête (phase de la séquence principale). Au cours de sa vie, l'étoile forme de nouveaux éléments lourds comme par exemple C, N, O ...

En parallèle de cette formation stellaire, le nuage dense à partir duquel l'étoile est née peut former un disque protoplanétaire en rotation dans lequel la matière va pouvoir s'agréger et constituer des corps de plus en plus massifs. La matière interstellaire peut donc évoluer pour mener à la formation de planètes, et se retrouver incorporée, en partie sous forme de matière primitive, dans les comètes et astéroïdes.



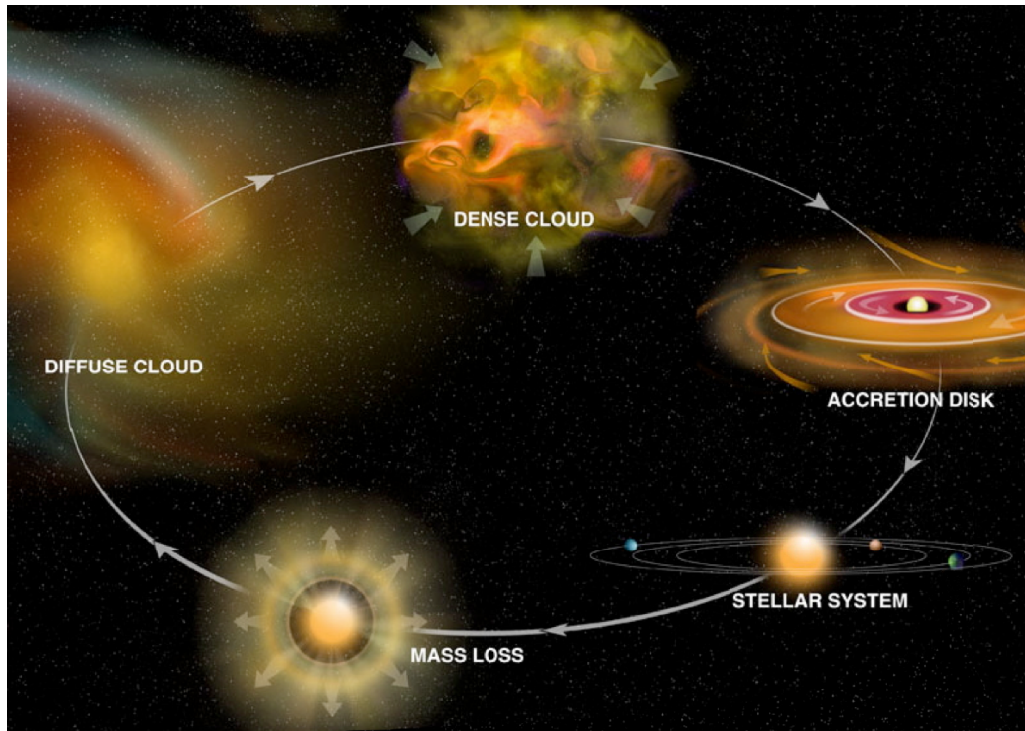


FIGURE 1.3 – Cycle de la matière interstellaire (Crédit : Bill Saxton, NRAO/AUI/NSF).

A la fin de la vie de l'étoile, lorsqu'elle a épuisé tout son combustible, d'énormes quantités de matière sont éjectées soit sous forme de vent stellaire, soit lors de l'explosion de supernovae pour les étoiles les plus massives ( $M \gtrsim 8M_{\odot}$ ). Des poussières peuvent être formées dans ces enveloppes d'étoiles évoluées. La matière formée par l'étoile par nucléosynthèse stellaire et les grains qui se sont éventuellement condensés dans son enveloppe sont éjectés dans le milieu interstellaire diffus environnant, contribuant à son renouvellement et son enrichissement en éléments lourds<sup>2</sup>. Le cycle de la matière dans la Galaxie se poursuit ainsi, formant de nouvelles populations d'étoiles à partir du milieu interstellaire, et approvisionnant le MIS par la matière créée grâce aux étoiles. Ces différentes phases interagissent sans cesse entre elles (effets sur le MIS du rayonnement stellaire, des chocs et des rayons cosmiques produits par les supernovae ...). Il existe donc une complexe rétroaction entre le milieu interstellaire et la formation stellaire dont résulte la structuration et la composition de la matière dans notre Galaxie.

2. A part quelques éléments produits lors de la nucléosynthèse primordiale, tous les éléments lourds résultent de ce processus d'enrichissement par nucléosynthèse stellaire.

# Les poussières interstellaires

---

## Sommaire

<b>2.1</b>	<b>Le rôle de la poussière dans le milieu interstellaire</b>	<b>18</b>
<b>2.2</b>	<b>Différents types de matière interstellaire solide</b>	<b>20</b>
2.2.1	Composition	20
2.2.2	Distribution de tailles et modèles de poussières	23
<b>2.3</b>	<b>Quelques observables et signatures spectrales observées dans le milieu interstellaire</b>	<b>23</b>
2.3.1	Extinction interstellaire	24
2.3.2	Emission de la poussière interstellaire	30
2.3.3	Polarisation	37
<b>2.4</b>	<b>Formation et évolution de la poussière interstellaire</b>	<b>37</b>
2.4.1	Formation	37
2.4.2	Evolution	39

---

Le chapitre précédent abordait le milieu interstellaire de manière générale, la phase interstellaire solide n'y a été qu'évoquée. Ce chapitre a donc pour but de présenter les poussières interstellaires. Il débutera par montrer pourquoi il est essentiel d'étudier ces grains, en donnant quelques exemples des rôles que la poussière peut jouer dans le milieu interstellaire (§2.1). Les connaissances que l'on a des poussières aujourd'hui ont été acquises grâce à l'analyse d'observations astronomiques et aux signatures spectrales détectées dans le milieu interstellaire, en particulier avec l'avènement de l'astronomie infrarouge. Ces différentes observables, dues à l'extinction (c'est-à-dire la perte de rayonnement à cause de l'absorption et la diffusion par les grains) ou l'émission par les poussières interstellaires, seront présentées dans la section 2.3. Puisque ces signatures spectrales sont générées par différentes populations de poussières, variant par leur composition et leur distribution de taille, j'ai pris le parti de commencer par décrire les différentes formes sous lesquelles on trouve ces grains dans la section 2.2, avant de présenter les observables associées, dans un souci de clarté pour le lecteur puisque j'y définirai différents termes nécessaires pour aborder ces observables et leurs interprétations. Ce chapitre se terminera par une discussion concernant la formation et l'évolution de ces poussières dans une galaxie (§2.4).

## 2.1 Le rôle de la poussière dans le milieu interstellaire

Les poussières représentent seulement 1% de la masse de la Galaxie et pourtant elles jouent un rôle très important dans les processus physico-chimiques qui gouvernent le milieu interstellaire. Elles sont omniprésentes dans la Voie Lactée et les autres galaxies, aussi bien à l'intérieur des phases diffuses que denses du MIS, dans les enveloppes circumstellaires, les éjectas de supernovae, les disques protoplanétaires ou dans le milieu interplanétaire. Parce qu'elles sont responsables de nombreux processus observés dans le milieu interstellaire, il est primordial de les étudier. Quelques exemples de ces processus dont la poussière est responsable et qui justifient pourquoi il est important de mieux connaître cette composante interstellaire solide sont donc brièvement présentés dans cette section.

### Déplétions et abondances interstellaires

Les poussières interstellaires contiennent l'essentiel des éléments lourds du milieu interstellaire. L'abondance de ces éléments dans la phase gazeuse du MIS est donc beaucoup plus faible que leur abondance interstellaire totale (ou abondance cosmique, celle des atomes à la fois dans le gaz et la poussière), mesurée dans les atmosphères stellaires censées représenter le milieu dans lequel les étoiles se sont formées (voir par exemple [Sofia & Meyer 2001] et [Zubko *et al.* 2004] pour une discussion sur l'influence du type de l'étoile de référence pour représenter les abondances du MIS). Les mesures de ce phénomène qu'on appelle la déplétion, apportent donc des contraintes fortes sur la composition des poussières [Zubko *et al.* 2004]. La déplétion observée peut être dépendante de l'environnement interstellaire sondé [Jenkins 2009] et traduire alors les mécanismes de formation et de destruction de grains dans ces régions. Les grains interstellaires sont principalement composés de carbone, d'oxygène, de magnésium, de silicium, de fer ainsi que d'autres éléments réfractaires<sup>1</sup> (Al, Na, Ca, Ni) en quantités moins importantes. La moitié au moins des atomes de carbone est estimée être en phase solide [Cardelli *et al.* 1996]. Cependant, les travaux récents de [Sofia *et al.* 2011] (en accord avec l'estimation de [Dwek *et al.* 1997]) suggèrent que les mesures de déplétion du carbone étaient peut-être sous-estimées, et qu'une part plus importante serait intégrée à la poussière (60-80%).

Par ailleurs, nous avons vu (§1.3.2) que les grains interstellaires, lorsqu'ils sont accélérés dans les ondes de choc de supernovae et érodés par les atomes et ions du gaz, pourraient être à l'origine des éléments lourds des rayons cosmiques. Les grains jouent donc aussi un rôle dans l'abondance d'une partie des rayons cosmiques. Par ce processus d'érosion par les chocs, une partie de la phase solide retourne dans la phase gaz.

### Effet sur le rayonnement

Dans le milieu diffus, les grains interstellaires absorbent une importante part (environ la moitié) du rayonnement ultraviolet et visible des étoiles, et réémettent l'énergie absorbée à plus grandes longueurs d'onde sous forme de rayonnement thermique ou de fluorescence, dans le domaine

---

1. Un composé réfractaire est un composé dont la température de condensation est haute.

Elément	C			N	O	Mg	Si	Fe
$[X/10^6\text{H}]_{\odot}^a$	$269 \pm 33$			$68 \pm 8$	$490 \pm 60$	$40 \pm 4$	$32 \pm 2$	$32 \pm 3$
$[X/10^6\text{H}]_{F,G\star}^b$	$358 \pm 82$			-	$445 \pm 156$	$43 \pm 17$	$40 \pm 13$	$28 \pm 8$
$[X/10^6\text{H}]_{\text{gaz}}$	$140 \pm 2^c$	$75 \pm 25^d$	$90 - 100^e$	$75 \pm 4^f$	$319 \pm 14^g$	$\sim 0$	$\sim 0$	$\sim 0$
$[X/10^6\text{H}]_{\text{dust}/\odot}$	$129 \pm 33$	$194 \pm 41$	$170 - 180$	$0 \pm 10$	$171 \pm 62$	$40 \pm 4$	$32 \pm 2$	$32 \pm 3$
$[X/10^6\text{H}]_{\text{dust}/F,G\star}$	$218 \pm 82$	$283 \pm 86$	$260 - 270$	-	$126 \pm 157$	$43 \pm 17$	$40 \pm 13$	$28 \pm 8$

<sup>a</sup> [Asplund *et al.* 2009], <sup>b</sup> [Sofia & Meyer 2001], <sup>c</sup> [Cardelli *et al.* 1996], <sup>d</sup> [Dwek *et al.* 1997], <sup>e</sup> [Sofia *et al.* 2011], <sup>f</sup> [Meyer *et al.* 1997], <sup>g</sup> [Meyer *et al.* 1998a].

TABLE 2.1 – **Abondance et déplétions des principaux éléments lourds entrant dans la composition des poussières.** Les deux premières lignes décrivent les abondances cosmiques déterminées avec pour référence le Soleil ou les étoiles de type F et G. La ligne suivante correspond aux abondances des différents éléments dans la phase gazeuse du milieu interstellaire (pour le carbone, trois différentes abondances déterminées à partir de différentes raies de l’ion C II sont comparées). Les deux dernières lignes montrent les abondances de la phase solide qui en résultent, déduites à partir des deux différentes références pour l’abondance cosmique.

allant de l’infrarouge moyen au submillimétrique (cf. Fig. 1.1 et §2.3.2.1). Dans certaines régions, les poussières vont avoir pour effet d’écranter le rayonnement stellaire permettant ainsi la survie de certaines molécules complexes qui n’auraient pu exister sans la présence de ces poussières. L’extinction et l’émission par la poussière interstellaire seront détaillées dans la section 2.3.

Un autre effet des poussières sur le rayonnement électromagnétique est la possibilité de polariser la lumière. Lorsque les grains ne sont pas sphériques, ils peuvent s’aligner avec le champ magnétique et partiellement polariser le rayonnement transmis, diffusé ou émis (cf. §2.3.3). Les données du satellite Planck vont notamment permettre de mieux connaître l’émission polarisée des poussières galactiques.

### Echanges thermiques entre gaz et poussières

Les poussières sont responsables de la principale source de chauffage du milieu interstellaire diffus qui est due à l’effet photoélectrique sur les grains [Draine 1978]. C’est un processus important qui se produit lorsque les photons UV sont suffisamment énergétiques pour arracher des électrons des grains. Ces électrons emportent une partie de l’énergie des grains sous forme d’énergie cinétique. Ensuite, lorsqu’ils se thermalisent sur les espèces du milieu, ils participent au chauffage du gaz. A l’inverse, la recombinaison des électrons sur les grains chargés peut participer au refroidissement [Bakes & Tielens 1994].

D’autre part, dans les régions denses ( $\gtrsim 10^4 \text{ cm}^{-3}$ ) que le rayonnement UV-visible des étoiles ne peut pas atteindre, les grains, chauffés par le rayonnement infrarouge, sont en général plus chauds que le gaz [Falgarone & Puget 1985]. Les collisions entre ces poussières et les atomes et molécules du gaz sont nombreuses dans ces régions de fortes densités, permettant un transfert

d'énergie efficace des grains vers le gaz.

### Les grains comme catalyseurs de certaines réactions chimiques

La surface des grains interagit fortement avec le gaz interstellaire et permet la formation de certaines molécules qui n'auraient pu être formées en phase gazeuse, jouant ainsi le rôle de catalyseur pour certaines réactions chimiques. La molécule  $\text{H}_2$ , la plus abondante de toutes, est ainsi formée à la surface des grains car elle a besoin d'un troisième corps pour se stabiliser lors de sa formation et ne peut se former en phase gazeuse qu'à des densités plus importantes que celles rencontrées dans le MIS [Hollenbach & Salpeter 1971, Duley & Williams 1986]. Cette réaction de formation de  $\text{H}_2$  à la surface des grains est par ailleurs exothermique, l'énergie libérée étant distribuée entre l'excitation rotationnelle et vibrationnelle de la molécule formée, son énergie cinétique, et le chauffage du grain [Hollenbach & McKee 1979]. Les échelles de temps pour former les glaces en phase gazeuse étant bien trop longues, les glaces se forment aussi à la surface des grains.

## 2.2 Différents types de matière interstellaire solide

La matière interstellaire solide existe sous différentes formes (composition, taille, ...) éventuellement coexistantes les unes avec les autres ou spécifiques à certains environnements interstellaires.

### 2.2.1 Composition

On distingue trois grandes classes de matière interstellaire solide : les glaces, les minéraux dont les silicates représentent une forme dominante, et la poussière carbonée<sup>2</sup>.

**Les glaces :** Elles sont formées par la phase interstellaire volatile, solide à basse température (10-100K). Elles se forment et/ou se condensent sur les grains dans les régions denses et froides où le rayonnement intense ne peut pénétrer et sont composées de glace d'eau majoritairement mais aussi de molécules comme  $\text{CO}$ ,  $\text{CO}_2$ ,  $\text{CH}_4$ ,  $\text{CH}_3\text{OH}$ ,  $\text{NH}_3$  ... Les glaces interstellaires sont le plus souvent amorphes. Pour une revue sur les glaces interstellaires, on pourra se référer par exemple à [Dartois 2009] et aux références citées.

**Les poussières silicatées :** Ces poussières constituent une partie de la phase réfractaire. Elles sont formées principalement à partir d'atomes de silicium, de magnésium, de fer et d'oxygène. Il existe plusieurs groupes de silicates mais les plus courants en astrophysique sont ceux appelés olivines (rapport  $\text{Si/O} = 1/4$ ) et pyroxènes (rapport  $\text{Si/O} = 1/3$ ). Les silicates interstellaires sont des solides qui semblent majoritairement amorphes dans le milieu interstellaire

---

2. Lorsque l'on parle de poussières ou de grains interstellaires, c'est la phase réfractaire de la matière solide qui est sous-entendue (c'est-à-dire que les glaces n'en font pas partie).

diffus : leurs bandes d'absorption caractéristiques (à 9.7 et 18  $\mu\text{m}$ , cf. §2.3), larges et sans structure, indiquent que moins de 5% des silicates sont cristallins (e.g. [Demyk *et al.* 1999, Li & Draine 2001, Kemper *et al.* 2004]). La profondeur des bandes IR à 9.7 et 18  $\mu\text{m}$  nécessite que presque tout le silicium, le magnésium et potentiellement le fer disponibles soit condensés dans ces grains de silicates amorphes. [Mathis 1998] a montré qu'il est même nécessaire que ces grains aient une structure poreuse pour reproduire les bandes observées. Par contre, dans les environnements circumstellaires comme autour des étoiles AGB, les silicates sont observés en fraction significative sous forme cristalline.

**Les poussières carbonées :** Elles forment l'autre partie de la phase réfractaire et sont constituées majoritairement de carbone et d'hydrogène.

Etant données les diverses formes et propriétés que le carbone peut adopter, et le fait que cette thèse soit consacrée à une composante de la poussière carbonée, je voudrais tout d'abord expliciter quelques termes spécifiques aux structures carbonées qui seront largement utilisés dans ce manuscrit (les revues de [Duley 1993] et [Robertson 1986] décrivent les différentes formes de matière carbonée). Le carbone peut former des liaisons simples, doubles, ou triples donnant lieu à des géométries différentes (tétraédrique, trigonale, linéaire). On parle respectivement d'hybridation  $\text{sp}^3$ ,  $\text{sp}^2$ , ou  $\text{sp}^1$ . Cet élément peut permettre de former des cycles, comme celui du benzène  $\text{C}_6\text{H}_6$ , dans lesquels les atomes de carbone forment des liaisons doubles délocalisées. Le caractère *aromatique* d'un matériau carboné désigne la présence de ces cycles benzéniques. Les carbones hybridés  $\text{sp}^2$  peuvent donc être associés à un caractère aromatique, mais peuvent aussi correspondre à une structure non-cyclique, sous forme de chaînes. Le terme *oléfinique* caractérise alors cette structure de chaînes contenant des liaisons doubles. Les atomes hybridés  $\text{sp}^3$  forment aussi des structures sous forme de chaînes. On parle dans ce cas de carbones ou structures *aliphatiques*. Le carbone peut donc former différentes structures. Les deux principales formes cristallines du carbone sont le diamant, constitué uniquement de carbones  $\text{sp}^3$ , et le graphite où le carbone est hybridé  $\text{sp}^2$ , sous forme de feuillets aromatiques liés entre eux par des forces de van der Waals. Les solides carbonés ne sont cependant pas tous cristallins. Les carbones amorphes (a-C) sont caractérisés par un mélange d'hybridations  $\text{sp}^3$ ,  $\text{sp}^2$ ,  $\text{sp}^1$  et de structures aromatiques et aliphatiques, différents degrés d'hydrogénation, ... Lorsque la proportion de carbone  $\text{sp}^3$  est importante, le matériau est parfois appelé *diamond-like carbon*. Si le contenu en hydrogène est significatif ( $\gtrsim 10\%$  par rapport au carbone), le matériau fait partie des carbones amorphes hydrogénés (a-C:H ou HAC pour *Hydrogenated Amorphous Carbons*). Il existe, du fait des multiples hybridations possibles, de nombreuses formes de matière carbonée (cf. Fig. 2.1).

Les poussières interstellaires carbonées ont d'abord été considérées sous forme de grains de graphite (e.g. [Mathis *et al.* 1977]), notamment pour expliquer la présence d'une bosse dans la courbe d'extinction autour de 217 nm (cf. §2.3.1). Mais il s'avère que le graphite n'est pas adapté pour reproduire cette signature spectrale et les déplétions du carbone observées dans les régions ayant subi un choc par exemple (voir discussion dans le §3 dans [Compiègne *et al.* 2011]). Compte tenu des processus d'évolution complexes et hors équilibre qui affectent la poussière,



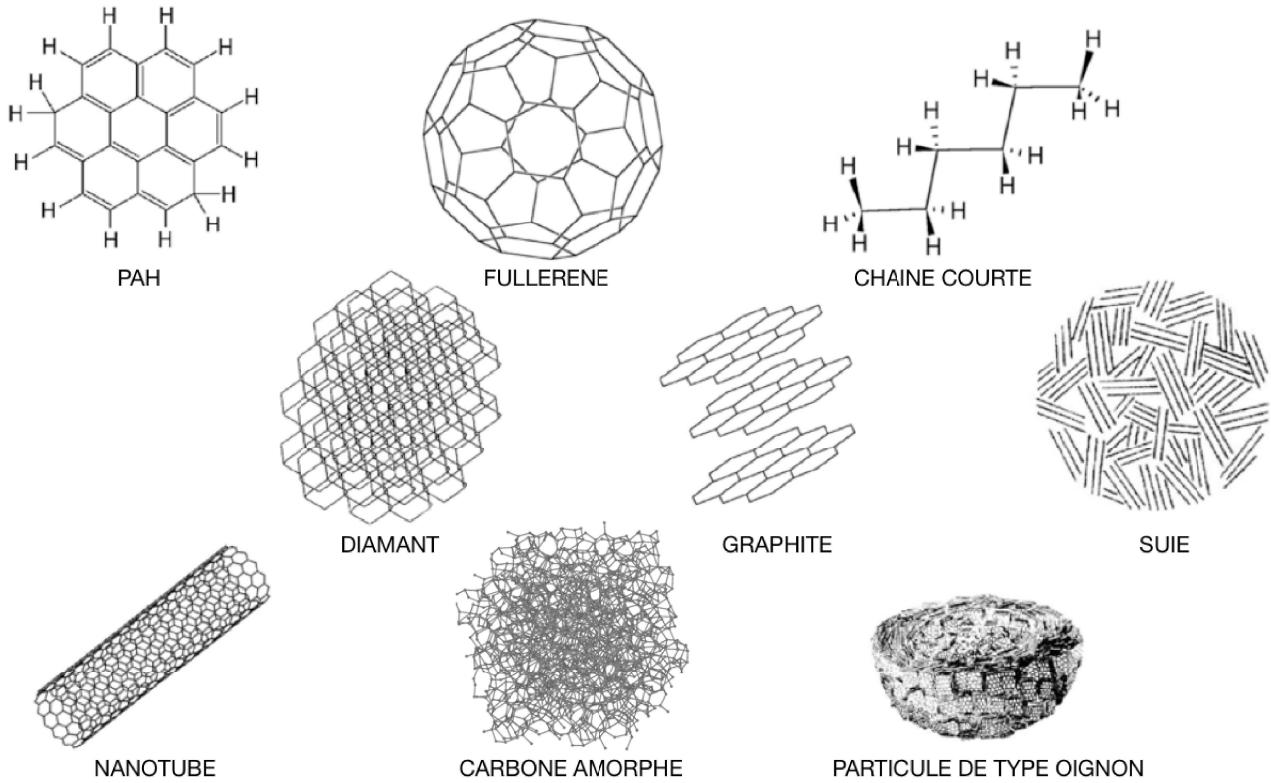


FIGURE 2.1 – Exemples de différentes formes de matière carbonée. D’après [Ehrenfreund & Charnley 2000].

on s’attend à ce qu’une partie importante de la matière carbonée soit sous forme amorphe, plus ou moins hydrogénée. Comme nous le verrons dans le chapitre suivant, les carbones amorphes hydrogénés, qui sont l’objet de cette thèse, représentent une composante importante des poussières carbonées, tracée notamment au travers d’une bande d’absorption à  $3.4\ \mu\text{m}$  observée dans le milieu interstellaire diffus. Des bandes d’émission observées dans l’infrarouge (AIB, cf. §2.3.2.2) ont mis en évidence la présence d’abondantes espèces possédant un caractère aromatique. Ces “grosses molécules” ou très petits grains, à la frontière entre phases gazeuse et solide, sont souvent associés à des molécules polycycliques aromatiques ou PAH (pour *Polycyclic Aromatic Hydrocarbons*) bien que leur nature ne soit pas encore élucidée. Une récente revue sur les PAH est donnée par [Tielens 2008]. Les poussières interstellaires carbonées observées autour des étoiles évoluées sont sous forme de carbones amorphes. Des grains présolaires<sup>3</sup> de graphite et de diamant ont été retrouvés dans les météorites [Hoppe & Zimmer 2000]. Les signatures spectrales du diamant (à  $3.43$  et  $3.53\ \mu\text{m}$ , [Chang *et al.* 1995, Pirali *et al.* 2007]) ont aussi été observées autour de quelques étoiles Herbig Ae/Be [Guillois *et al.* 1999, Acke & van den Ancker 2006].

3. grains dont l’origine précède la formation de la nébuleuse solaire

### 2.2.2 Distribution de tailles et modèles de poussières

Les poussières interstellaires ont des tailles variant essentiellement entre quelques angströms et quelques micromètres. Les informations concernant ces tailles sont notamment obtenues des courbes d'extinction et d'émission de ces poussières, ainsi qu'à partir des mesures de polarisation (ces observables sont discutées à la section 2.3). Pour rendre compte de ces observations, des modèles de poussières ont été élaborés, comprenant plusieurs composantes de grains, de nature, de tailles et compositions différentes.

Les observations de l'extinction interstellaire de l'UV à l'IR ont d'abord montré que les poussières devaient avoir une large distribution de tailles. Le modèle de grains MRN (pour Mathis, Rumpl et Nordsieck) [Mathis *et al.* 1977] fut le premier à prendre en compte l'extinction sur cette large gamme de longueurs d'onde. Il comprenait une composante de graphite et une autre de silicates amorphes. La distribution de tailles adoptée est décrite par une loi de puissance où le nombre de grains par atome d'hydrogène avec un rayon compris entre  $a$  et  $a + da$  est proportionnel à  $a^{-\alpha}$  et  $\alpha = 3.5$ . Les tailles de la distribution MRN s'étendent entre  $a_{min} \sim 50 \text{ \AA}$  et  $a_{max} \sim 0.25 \text{ }\mu\text{m}$ .

Un des premiers modèles qui a cherché à reproduire à la fois l'extinction et l'émission des poussières de manière cohérente est celui développé par [Désert *et al.* 1990]. C'est un modèle à 3 composantes, où chacune a une distribution de taille définie par les paramètres  $\alpha$ ,  $a_{min}$  et  $a_{max}$ . Le modèle prend en compte les PAH ( $\alpha = 3$ ,  $a_{min} = 4 \text{ \AA}$  et  $a_{max} = 1.2 \text{ nm}$ ), les très petits grains (VSG pour *Very Small Grains*,  $\alpha = 2.6$ ,  $a_{min} = 1.2 \text{ nm}$  et  $a_{max} = 15 \text{ nm}$ ) probablement carbonés, et les gros grains (BG pour *Big Grains*,  $\alpha = 2.9$ ,  $a_{min} = 15 \text{ nm}$  et  $a_{max} = 110 \text{ nm}$ ) associés aux silicates. Les gros grains représentent l'essentiel de la masse des poussières mais les très petits grains contiennent la majorité de la surface qui, on l'a vu, joue un rôle important dans la chimie interstellaire.

Le modèle DustEM, plus récent, est une des évolutions du modèle de [Désert *et al.* 1990], qui comprend les PAH, des petits et gros grains de carbones amorphes hydrogénés, et des gros grains de silicates amorphes [Compiègne *et al.* 2011].

## 2.3 Quelques observables et signatures spectrales observées dans le milieu interstellaire

Les informations que l'on obtient sur les grains interstellaires proviennent toutes de leur interaction avec le rayonnement, que l'on peut observer grâce aux télescopes au sol ou spatiaux. Pour certains astrophysiciens, l'effet de la poussière sur le rayonnement peut aussi constituer une contribution gênante qu'il est nécessaire de soustraire ou corriger afin de pouvoir observer d'autres composantes du rayonnement. Lorsque l'on s'intéresse à la poussière en elle-même, les signatures qu'elle laisse dans le rayonnement électromagnétique constituent des indices permettant d'obtenir des informations sur cette phase solide de la matière interstellaire, sa composition et comment elle interagit dans les différents environnements astrophysiques. L'observation de





FIGURE 2.2 – **Le nuage moléculaire Barnard 68 illustrant l’extinction interstellaire.** *A gauche* : Image composite en lumière visible (bandes B (0.44  $\mu\text{m}$ ), V (0.55  $\mu\text{m}$ ), et I (0.90  $\mu\text{m}$ )) réalisée au Very Large Telescope (VLT). *A droite* : Image composite dans le visible et l’infrarouge proche (bandes B, I, et K (2.2  $\mu\text{m}$ )) réalisée avec le New Technology Telescope (NTT). Crédit : ESO

ces signatures spectrales permet donc de tracer les différents types de poussières et de suivre leur évolution dans la Galaxie.

### 2.3.1 Extinction interstellaire

Historiquement, les poussières interstellaires ont été mises en évidence grâce à l’extinction qu’elles produisent sur le rayonnement provenant des étoiles. En 1784, l’astronome William Herschel remarqua une zone sombre dans le ciel (comme celle de la Figure 2.2) et pensa qu’il s’agissait d’une zone vide d’étoiles. On sait maintenant que les zones sombres correspondent à des nuages interstellaires opaques au rayonnement des étoiles en arrière plan.

L’extinction interstellaire correspond à la perte de rayonnement provenant d’une source (stellaire ou autre) due à l’absorption et à la diffusion de la lumière par les poussières et le gaz interstellaire situés sur la ligne de visée, entre la source et l’observateur. L’intensité  $I(\lambda)$  d’un rayonnement traversant le milieu interstellaire est atténuée par l’extinction. Si l’on appelle  $I_0(\lambda)$  le rayonnement non modifié par l’extinction, on peut écrire :

$$I(\lambda) = I_0(\lambda) \exp(-\tau(\lambda)) \quad (2.1)$$

$$\tau(\lambda) = \sigma_{ext}(\lambda) \int n \, dL = \sigma_{ext}(\lambda) N \quad (2.2)$$

$\tau(\lambda)$  est la profondeur optique due à l’absorption et à la diffusion.  $\sigma_{ext}$  est la section efficace

d'extinction des poussières distribuées sur la ligne de visée (de longueur  $L$ ) et  $n$  leur densité.  $N$  définit la densité de colonne. L'extinction  $A_\lambda$ , qui exprime une différence de magnitude, est définie comme :

$$A_\lambda = -2.5 \log(I(\lambda)/I_0(\lambda)) \quad (2.3)$$

$$A_\lambda = 1.086 \tau(\lambda) \quad (2.4)$$

Etant donné que l'on n'a pas accès à  $I_0$ , l'extinction n'est pas directement mesurable. Une méthode souvent utilisée pour déterminer  $A_\lambda$  est la méthode dite des paires<sup>4</sup>. Elle consiste en la mesure du spectre de deux étoiles distinctes, de même type spectral, l'une subissant une extinction, l'autre pas. Les différences entre les spectres sont supposées être dues à l'extinction et donnent directement la dépendance de l'extinction avec la longueur d'onde. Comme les deux étoiles ne se trouvent pas forcément à la même distance et aussi pour pouvoir comparer différentes lignes de visée, l'extinction est normalisée par rapport à la bande V (à 550 nm). Elle est donc souvent exprimée par  $A_\lambda/A_V$  ou encore par  $E_{\lambda-V}/E_{B-V}$ , où  $E(\lambda_1, \lambda_2)$  ou  $E_{\lambda_1-\lambda_2}$  est l'excès de couleur (aussi appelé extinction sélective), défini par :

$$E(\lambda_1, \lambda_2) = A_{\lambda_1} - A_{\lambda_2} \quad (2.5)$$

La loi d'extinction est la fonction qui décrit l'extinction  $A_\lambda$  de la lumière en fonction de sa longueur d'onde  $\lambda$  pour une ligne de visée donnée. Le paramètre  $R_V$ , le rapport entre l'extinction totale et l'extinction sélective dans la bande V, permet de caractériser la loi d'extinction (la pente de la courbe d'extinction diminue lorsque  $R_V$  augmente, cf. Fig. 2.3) dans une ligne de visée donnée [Cardelli *et al.* 1989].

$$R_V = \frac{A_V}{E_{B-V}} \quad (2.6)$$

Dans le milieu interstellaire diffus de la Voie Lactée, on trouve  $R_V = 3.1$  [Savage & Mathis 1979, Cardelli *et al.* 1989], mais la loi d'extinction varie suivant les régions [Cardelli *et al.* 1989, Fitzpatrick & Massa 1990, Fitzpatrick 1999]. Des valeurs de  $R_V$  plus fortes sont par exemple observées en direction de nuages moléculaires et traduisent probablement un grossissement des grains dans ces régions.

Une autre représentation possible de la loi d'extinction consiste à porter l'épaisseur optique par unité de densité de colonne totale d'hydrogène ( $\sigma_{ext}(\lambda) = \tau(\lambda)/N_H$ ). On passe d'une fonction à l'autre pour le milieu diffus en utilisant la relation entre l'excès de couleur et la densité de colonne totale de l'hydrogène déduite des observations avec les satellites Copernicus et FUSE [Bohlin *et al.* 1978, Rachford *et al.* 2002].

$$N_H/E_{B-V} = 5.8 \cdot 10^{21} \text{ H cm}^{-2} \text{ mag}^{-1} \quad (2.7)$$

La courbe d'extinction, représentée sur la Figure 2.3, est tracée en général en fonction de l'inverse de la longueur d'onde. En plus de plusieurs raies d'absorption discrètes discutées

---

4. D'autres techniques existent, comme par exemple celle du comptage d'étoiles.

ci-après, l’extinction interstellaire est caractérisée par des valeurs croissantes avec l’énergie. Ainsi, le rayonnement bleu des étoiles sera plus éteint que le rouge. On parle de rougissement interstellaire dû aux poussières sur la ligne de visée (cf. Fig. 2.2).

Dans l’infrarouge, la croissance de l’extinction est souvent considérée comme “universelle” car très peu dépendante de  $R_V$  (en dehors des régions denses). La loi d’extinction du MIS diffus dans l’infrarouge proche (qui sera utilisée dans le chapitre 4) est ainsi caractérisée par une loi de puissance  $A_\lambda \propto \lambda^{-\beta}$  avec  $\beta \approx 1.6 - 1.8$  (e.g. [Rieke & Lebofsky 1985, Whittet *et al.* 1993]). Dans l’UV lointain ( $6 \lesssim 1/\lambda \lesssim 10 \mu\text{m}^{-1}$ ), l’augmentation de l’extinction est forte et non linéaire.

La courbe d’extinction renseigne non seulement sur la composition des poussières, mais aussi sur leur distribution de taille. La forte augmentation de l’extinction depuis le visible vers l’UV implique une quantité significative de petit grains (ayant de petites tailles devant la longueur d’onde, c’est-à-dire des grains qui interagissent avec le rayonnement dans la limite de Rayleigh à ces longueurs d’onde). La variation de la courbe d’extinction d’une ligne de visée à une autre (c’est-à-dire les différentes valeurs de  $R_V$ ) peut traduire la variation de distribution de tailles des grains d’une région à l’autre, ces régions étant plus ou moins affectées par les processus menant à l’érosion/destruction des grains ou au contraire à leur coagulation.

### Le “Bump” à 217 nm

Une large “bosse” dans la courbe d’extinction est située à 2175 Å. Sa position est remarquablement constante, tandis que sa largeur et son intensité varient d’une ligne de visée à une autre [Fitzpatrick & Massa 1986]. L’origine de cette signature spectrale n’est toujours pas complètement résolue. Le graphite produit une bosse à 217 nm, mais ne peut pas reproduire la variabilité de la largeur du bump observée dans le MIS [Fitzpatrick & Massa 2007]. [Draine & Malhotra 1993] ont suggéré que cette variabilité pouvait provenir de la présence d’hydrogène ou de défauts. La forte bande d’absorption due aux excitations électroniques  $\pi \rightarrow \pi^*$  du carbone  $\text{sp}^2$  n’est cependant pas spécifique au graphite, mais existe dans diverses espèces carbonées contenant des cycles aromatiques. Le bump à 217 nm est aujourd’hui communément attribuée à cette transition électronique, mais la structure globale du porteur de cette signature est mal définie. Les PAH sont proposés pour être les porteurs du bump [Joblin *et al.* 1992, Cecchi-Pestellini *et al.* 2008, Iatì *et al.* 2008, Steglich *et al.* 2010]. On peut noter que la transition  $\sigma \rightarrow \sigma^*$  des carbones aromatiques produit une autre bosse à environ 750 Å dont l’aile aux plus grandes longueurs d’onde pourrait correspondre avec l’augmentation non linéaire de l’extinction dans l’UV lointain [Jäger *et al.* 2009]. La quantité de carbone nécessaire pour reproduire l’intensité du bump à 217 nm serait de l’ordre de 20-30% du carbone disponible dans le MIS.

### Les bandes diffuses interstellaires (DIB pour *Diffuse Interstellar Bands*)

Ce sont des bandes d’absorption dans le visible et les domaines proches du visible, de largeurs, d’intensités et de formes différentes (Fig. 2.4). Leur nombre s’élève à plusieurs centaines. Depuis

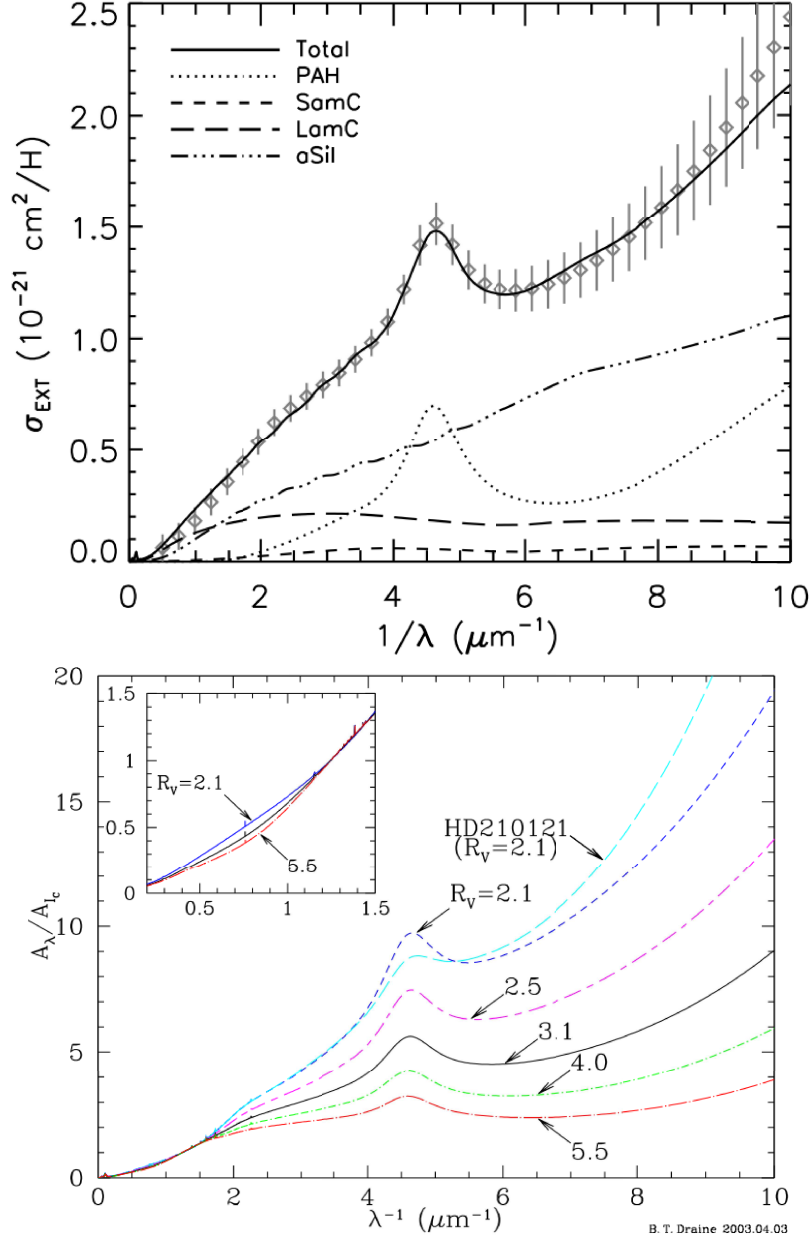


FIGURE 2.3 – **Courbe d’extinction du milieu interstellaire.** *En haut* : Les diamants gris correspondent à la loi d’extinction pour  $R_V = 3.1$  (c’est-à-dire au MIS diffus galactique) donnée par [Fitzpatrick 1999], et  $N_H/E_{B-V} = 5.8 \cdot 10^{21} \text{ H cm}^{-2} \text{ mag}^{-1}$  [Bohlin et al. 1978]. Les barres d’erreurs indiquent la dispersion des courbes d’extinction observées. Le modèle DustEM (en noir) est utilisé ici pour ajuster les données. Il comprend plusieurs composantes de poussières : des gros grains de silicates (aSil) et de carbones (LamC), des petits grains de carbones (SamC), et des PAH (Source : [Compiegne 2011]). *En bas* : Courbes d’extinction pour différentes valeurs de  $R_V$  [Fitzpatrick 1999] (Source : [Draine 2003]).

la découverte des premières d'entre elles il y a environ 90 ans [Heger 1922], aucun de leur porteur n'a été identifié à ce jour. Leur largeur de plus de  $1 \text{ \AA}$  exclut les petites molécules. Elles sont probablement dues à de grosses molécules ou de petits grains. Les PAH font partie des candidats plausibles (e.g. [Bréchignac & Pino 1999, Kokkin *et al.* 2008, Bouwman *et al.* 2009]). Une récente revue est donnée par [Snow & Destree 2011].

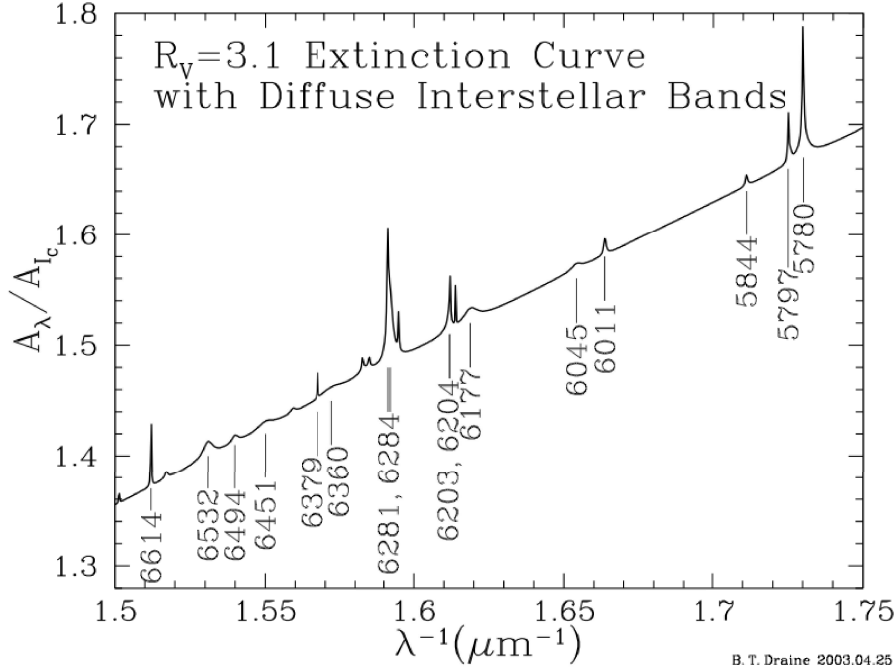


FIGURE 2.4 – **Bandes diffuses interstellaires.** Extrait correspondant à la courbe d'extinction du MIS diffus entre 570 et 667 nm et montrant les raies de quelques DIB. Source : [Draine 2003].

### Différentes bandes d'absorption infrarouges

La composition et la structure des poussières peuvent aussi être déterminées à partir de leurs bandes d'absorption dans l'infrarouge. Ces larges bandes sont visibles en absorption par rapport à un continuum d'émission, lorsque la densité de colonne de poussière entre la source IR et l'observateur est suffisante. Les modes de vibration (élongation, pliage, ...) apparaissent dans l'infrarouge proche et moyen. Les modes de rotation ont lieu à plus basses énergies dans l'infrarouge lointain. La spectroscopie infrarouge permet donc de caractériser ces signatures spectrales (position, profondeur optique<sup>5</sup>  $\tau$ , largeur, ...) pour obtenir des informations sur les porteurs des bandes observées. Un exemple de spectre observé en direction du centre galactique, présenté sur la Fig. 2.5, montre quelques-unes de ces bandes.

5. La profondeur optique  $\tau$  est défini par :  $\tau = -\ln(F/F_c)$ , où  $F$  et  $F_c$  sont respectivement le flux observé au maximum d'absorption et le flux du continuum sous-jacent.



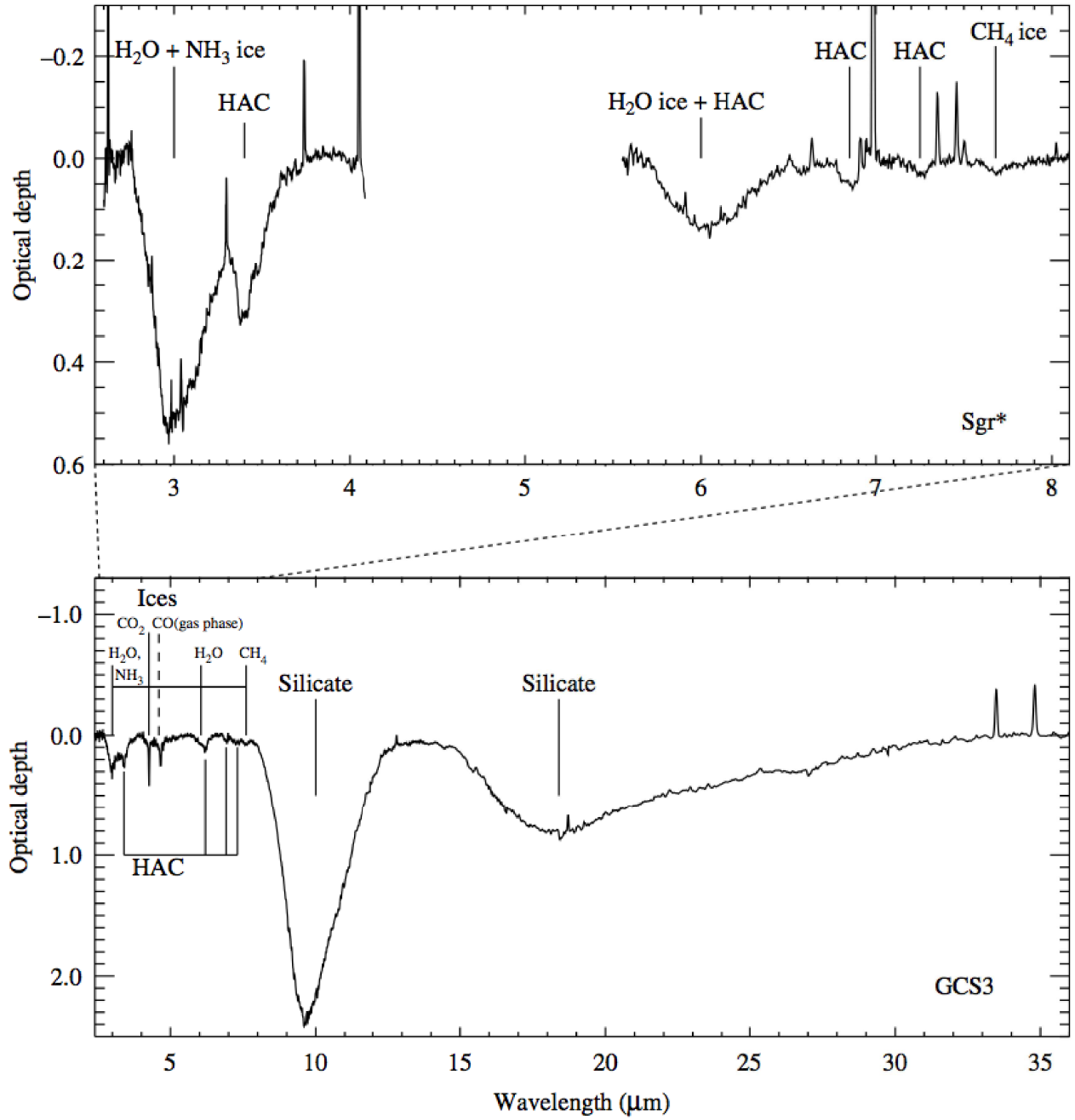


FIGURE 2.5 – Exemples de bandes d’absorption IR dues aux poussières et aux glaces, observées en direction du centre galactique. Certaines de ces bandes (comme celles des carbones amorphes hydrogénés ou HAC) trouvent leur origine dans le milieu interstellaire diffus le long de la ligne de visée, d’autres proviennent de solides présents dans des nuages moléculaires des bras spiraux interceptés par la ligne de visée (les glaces de H<sub>2</sub>O, NH<sub>3</sub>, CH<sub>4</sub> par exemple). Source : [Tielens 2005].

Les bandes d'absorption les plus intenses sont deux profondes bandes observées à 9.7 et 18  $\mu\text{m}$  et traçant la présence de silicates. Ces bandes sont respectivement caractéristiques des modes d'élongation et de pliage des liaisons O-Si-O. La poussière carbonée est détectable en absorption grâce à une bande à 3.4  $\mu\text{m}$  par exemple, due aux modes d'élongation des liaisons C-H des composantes aliphatiques du carbone (cf. Chapitre 3). Une bande à 6.2  $\mu\text{m}$  est attribuée aux hydrocarbures aromatiques (mode d'élongation des liaisons CC) [Schutte *et al.* 1998] mais semble être d'origine circumstellaire [Chiar & Tielens 2001].

Les glaces sont aussi observées au travers des absorptions de leurs modes de vibration, dans les régions denses et froides du MIS (pour  $A_V \gtrsim 3$ , [Whittet *et al.* 1988, Murakawa *et al.* 2000]). Notamment, on trouve des absorptions autour de 3.1  $\mu\text{m}$  (3280  $\text{cm}^{-1}$ , élongation O-H) et 6.0  $\mu\text{m}$  (1660  $\text{cm}^{-1}$ , pliage O-H) caractéristiques de la glace d'eau. On peut aussi observer la glace de monoxyde de carbone autour de 4.67  $\mu\text{m}$ , celle de  $\text{CO}_2$  à 4.27 et 15.2  $\mu\text{m}$ , ou encore celle de  $\text{CH}_4$  à 7.67  $\mu\text{m}$  par exemple.

## 2.3.2 Emission de la poussière interstellaire

### 2.3.2.1 Emission thermique des gros et très petits grains

Une part importante ( $\gtrsim 30\%$ , [Bernstein *et al.* 2002]) de l'énergie émise par les étoiles est absorbée par la poussière et est rayonnée sous forme d'émission thermique dans l'IR et le submillimétrique. On distingue l'émission par les grains suffisamment gros pour être à l'équilibre thermique (BG,  $a \gtrsim 15$  nm), de l'émission des plus petits grains (VSG,  $a \lesssim 15$  nm).

L'ensemble des grains étant à l'équilibre thermique émettent un rayonnement dans l'infrarouge lointain (cf. Fig. 2.6) dont le spectre peut être représenté par celui d'un corps noir modifié, avec une température effective moyenne de 17.5 K dans le MIS diffus [Boulanger *et al.* 1996]. L'énergie de ce rayonnement de grains à l'équilibre thermique dépend de leur température effective et donc de l'intensité du champ de rayonnement incident : plus les photons incidents sont nombreux, plus le rayonnement émis par ces gros grains aura lieu à haute énergie. Le spectre d'émission des poussières peut donc en principe permettre de déterminer l'intensité du rayonnement UV-visible ambiant.

La détection d'un fort excès d'émission dans l'IR moyen (cf. Fig. 2.6) a été une surprise révélée par les observations faites avec IRAS [Laureijs *et al.* 1988, Chlewicki & Laureijs 1988]. Cela a mis en évidence l'existence d'une population de petits grains chauffés à des températures élevées ( $100 \text{ K} < T < 1000 \text{ K}$ ). Ces petites particules (VSG) ne sont donc pas à l'équilibre thermique. Dans ce cas, l'absorption d'un seul photon UV permet une forte élévation de la température du grain, puis le grain se refroidit rapidement. Si le temps entre l'arrivée de deux photons successifs est plus long que le temps de refroidissement du grain, sa température fluctue et l'équilibre thermique n'est pas atteint. On parle de chauffage stochastique ou impulsif. Ce rayonnement, contrairement à celui des gros grains, ne dépend pas de l'intensité du champ de rayonnement incident (tant que le grain reçoit les photons un par un et n'est donc pas à l'équilibre thermique), mais de sa dureté (énergie des photons reçus), de la distribution de taille

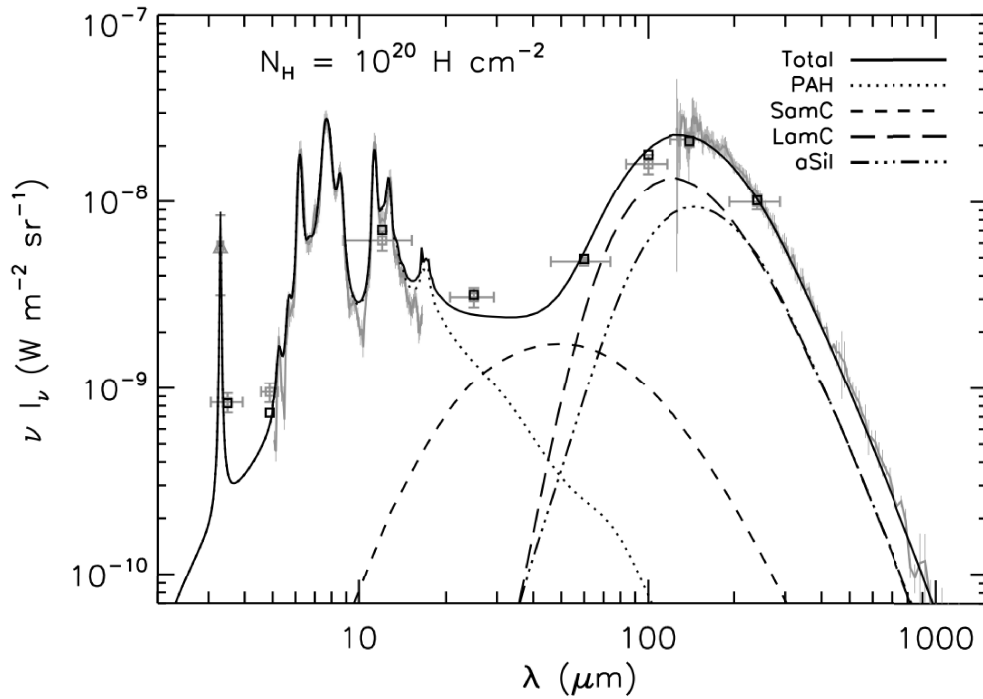


FIGURE 2.6 – **Spectre d'émission de la poussière** ou SED pour *Spectral Energy Distribution*. Cette figure issue de [Compiègne *et al.* 2011] montre un spectre correspondant au milieu diffus à hautes latitudes galactiques. Les données observées, en gris, ont été obtenues par les instruments ISOCAM/CVF (IR moyen, sur le satellite ISO), FIRAS (IR lointain, sur le satellite COBE), DIRBE (carrés, sur le satellite COBE), et AROME (triangle, expérience sur un vol ballon). Le modèle DustEM (en noir) est utilisé ici pour ajuster les données. Il comprend plusieurs composantes de poussières : des gros grains de silicates (aSil) et de carbones (LamC), des petits grains de carbones (SamC), et des PAH.

des petits grains et de leur capacité calorifique.

Les fluctuations de température des plus petits grains est illustrée sur la Figure 2.7. On remarque que les grains carbonés avec  $a \gtrsim 20$  nm dans le champ de rayonnement interstellaire standard peuvent être considérés à l'équilibre.

### 2.3.2.2 Bandes d'émission infrarouge

Des bandes à 3.3, 6.2, 7.7, 8.6, 11.3 et 12.7  $\mu\text{m}$  sont observées dans le spectre d'émission infrarouge (cf. Fig. 2.6). Ces bandes intenses ont été découvertes dans les années 70 en direction de la nébuleuse par réflexion NGC7027 [Gillett *et al.* 1973]. Elles ont tout d'abord été appelées UIR pour *Unidentified InfraRed bands* (ou IEF pour *Infrared Emission Features*). Dans les années 80, ces bandes ont été associées aux modes de vibration des liaisons caractéristiques d'hydrocarbures aromatiques [Duley & Williams 1981, Leger & Puget 1984, Allamandola *et al.* 1985]



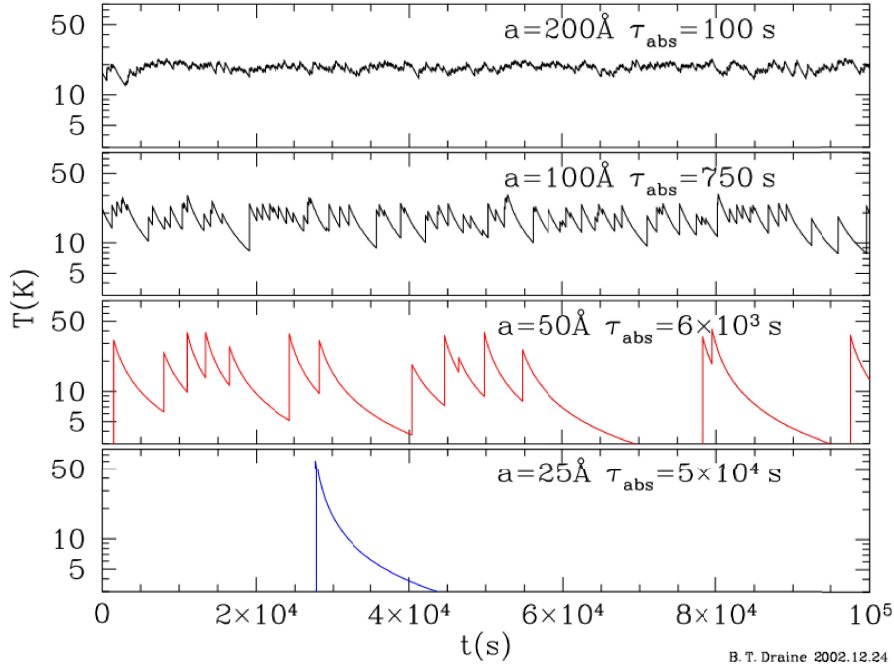
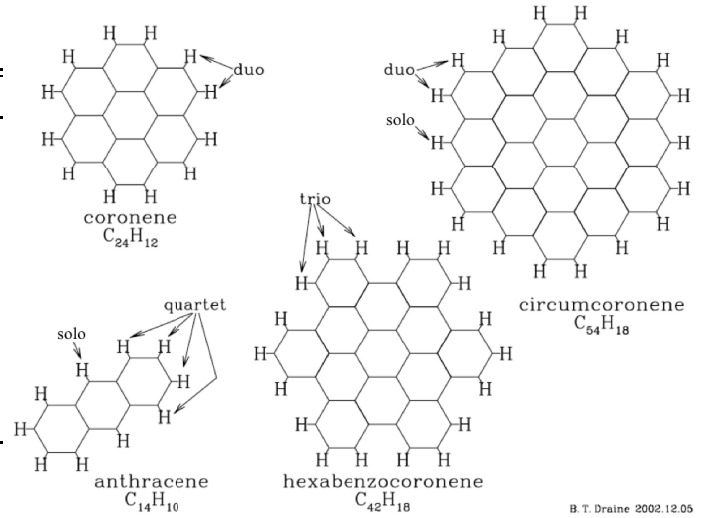


FIGURE 2.7 – Illustration des fluctuations en température des très petits grains interstellaires carbonés chauffés par le champ de rayonnement interstellaire standard.  $\tau_{abs}$  représente le temps caractéristique entre l'absorption de deux photons. Source : [Draine 2003].

(cf. Tableau 2.2). C'est à partir de ce moment là que l'on parle de PAH interstellaires et que ces bandes sont dénommées AIB pour *Aromatic Infrared Bands*. Depuis, elles ont été détectées dans des environnements explorant des conditions physiques très variées (Cirrus, régions de photodissociation, nébuleuses par réflexion, régions HII, nébuleuses planétaires).

Il est maintenant admis que les émetteurs de ces bandes sont de grosses molécules ou très petits grains formés de cycles aromatiques, chauffés par l'absorption de photons UV-visible [Allamandola *et al.* 1989], mais leurs formes exactes ne sont pas clairement identifiées. La position précise et le rapport d'intensité de ces bandes varient beaucoup et sont fonction des propriétés de leurs porteurs telles que leur taille, leur état de charge ou leur hydrogénation [Joblin *et al.* 1994, Joblin *et al.* 1995, Verstraete *et al.* 2001, Le Page *et al.* 2003, Rapacioli *et al.* 2005, Draine & Li 2007]. Ces propriétés étant elles-mêmes dépendantes des conditions de rayonnement, de densité, de température du milieu dans lequel ces espèces aromatiques se trouvent, les bandes aromatiques pourront être utilisées pour tracer les conditions physiques interstellaires.

$\lambda$ ( $\mu\text{m}$ )	Mode de vibration associé
3.3	Elongation C-H
6.2	Elongation C-C
7.7	Elongation C-C
8.6	Pliage dans le plan C-H
11.3	Pliage hors plan C-H (solo)
12.0	Pliage hors plan C-H (duo)
12.7	Pliage hors plan C-H (trio)
13.6	Pliage hors plan C-H (quartet)



B. T. Draine 2002.12.05

TABLE 2.2 – Principales bandes d’émission infrarouge aromatiques (AIB) et les liaisons qui leur sont associées. L’illustration des différents sites de liaisons C-H (solo, duo, trio, quartet) est représenté à droite (Source : [Draine 2003]).

### 2.3.2.3 L’émission rouge étendue

L’émission rouge étendue (ERE) est une large bande d’émission, sans structure, apparaissant dans la partie rouge du spectre de nombreuses régions interstellaires. Cette signature spectrale a tout d’abord été découverte dans la nébuleuse du Rectangle Rouge [Cohen *et al.* 1975, Schmidt *et al.* 1980], mais est maintenant observée dans des environnements astrophysiques très variés : le milieu interstellaire diffus [Szomoru & Guhathakurta 1998, Gordon *et al.* 1998, Witt *et al.* 2008], des régions H II [Perrin & Sivan 1992, Sivan & Perrin 1993, Darbon *et al.* 1998, Darbon *et al.* 2000], des nébuleuses par réflexion [Witt & Schild 1985, Witt & Boroson 1990], des nébuleuses planétaires riches en carbone [Furton & Witt 1990, Furton & Witt 1992], une nébuleuse sombre [Mattila 1979, Chlewicki & Laureijs 1987], ainsi que des galaxies externes [Perrin *et al.* 1995, Darbon *et al.* 1998, Pierini *et al.* 2002].

Les nombreuses observations de l’ERE (quelques exemples sont représentés sur la Figure 2.8) permettent de déterminer ses différentes caractéristiques spectrales. Cette bande d’émission apparaît à des longueurs d’onde situées entre 500 et 950 nm. La position du maximum de l’ERE est variable d’une ligne de visée à une autre entre 600 et 800 nm et semble corrélée avec l’intensité du champ de rayonnement incident comme le montre la Figure 2.9 (en haut à droite). La bande d’émission se déplace vers les plus grandes longueurs d’onde lorsque le rayonnement devient plus intense [Smith & Witt 2002]. De plus, la largeur de cette bande est corrélée à la longueur d’onde du maximum de l’ERE : la bande s’élargit en se déplaçant vers les plus grandes longueurs d’onde [Witt & Boroson 1990, Darbon *et al.* 1999]. La largeur à mi-hauteur de la bande de l’ERE varie ainsi entre 100 et 220 nm<sup>6</sup>. Ce rayonnement n’est pas polarisé

6. il faut noter que l’on lit souvent que la largeur à mi-hauteur (FWHM) de l’ERE est comprise entre 60 et

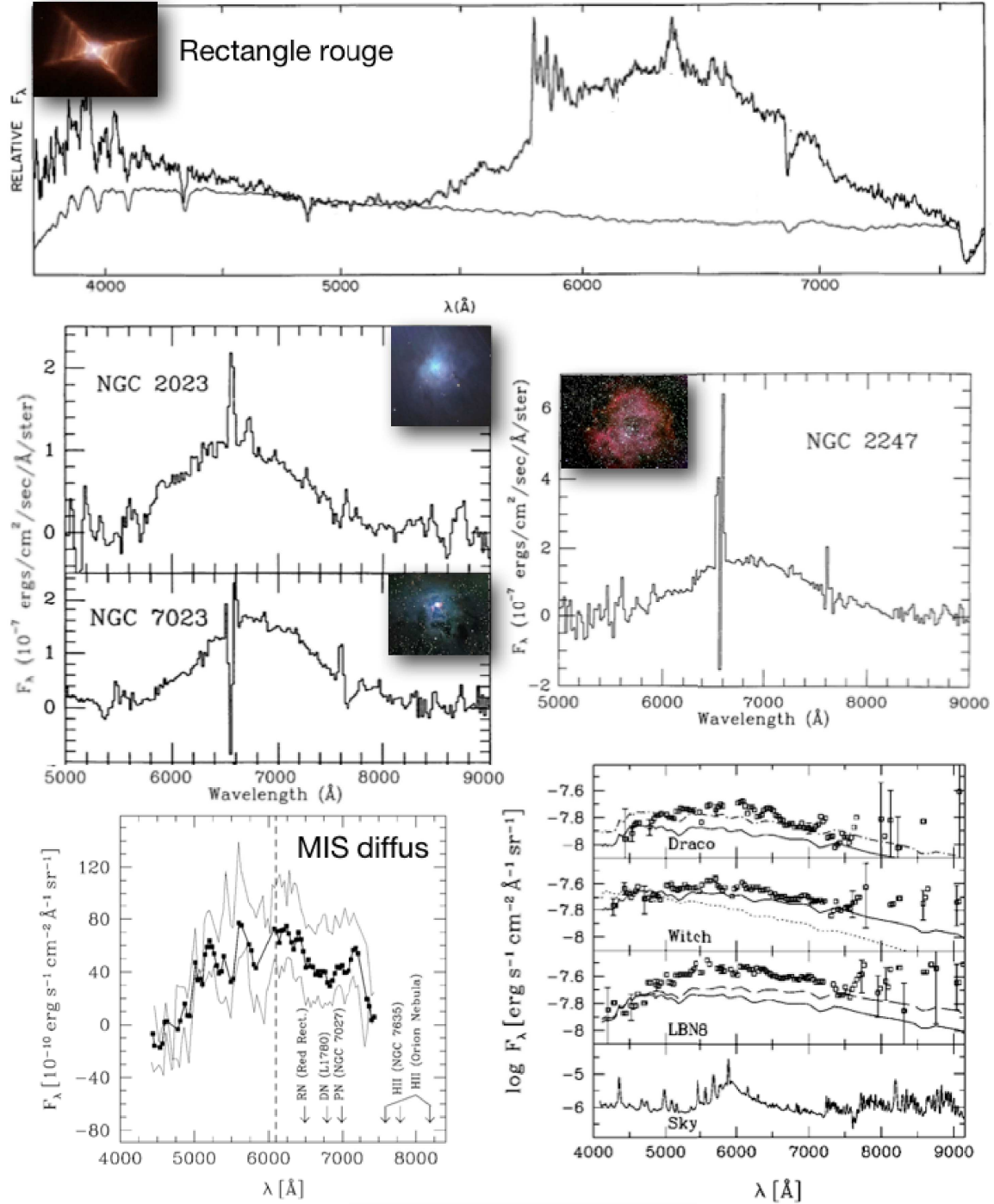


FIGURE 2.8 – Spectres de l'ERE observés dans différentes régions interstellaires. *En haut* : spectre du Rectangle Rouge obtenu par [Schmidt *et al.* 1980]. Le trait fin représente le spectre de son étoile centrale HD44179, normalisé à 5000 Å pour comparaison. *Au milieu* : spectres des nébuleuses NGC 2023, NGC 7023 et NGC 2247 obtenus par [Witt & Boroson 1990]. *En bas* : spectre du milieu interstellaire diffus observé par [Szomoru & Guhathakurta 1998]. A droite, les trois cirrus (Draco, Witch, et LBN8) observés sont comparés au niveau du fond de ciel, et, la moyenne de l'ERE obtenue vers ces trois régions est présentée à gauche.

[Watkin *et al.* 1991].

L'émission rouge étendue est attribuée à de la photoluminescence (PL) de poussières interstellaires ayant absorbé des photons UV-visible<sup>7</sup>. La vraie nature des porteurs de l'ERE n'est cependant pas connue. De nombreux candidats ont été proposés durant ces 30 dernières années : des PAH sous forme de molécules, d'ions ou d'agrégats [D'Hendecourt *et al.* 1986, Vijh *et al.* 2005, Rhee *et al.* 2007, Berné *et al.* 2008], des carbones amorphes hydrogénés (HAC ou a-C:H) [Duley 1985, Duley & Williams 1988, Witt & Schild 1988, Witt & Boroson 1990], [Furton & Witt 1993, Duley *et al.* 1997, Seahra & Duley 1999], des nanodiamants [Duley 1988, Chang *et al.* 2006], des fullerènes C<sub>60</sub> [Webster 1993], des composés appelés QCC (pour *Quenched Carbonaceous Composites*) [Sakata *et al.* 1992, Wada *et al.* 2009], et aussi des matériaux non carbonés comme par exemple des nanoparticules de silicium cristallin (SNP pour *silicon nanoparticles*) [Ledoux *et al.* 1998, Witt *et al.* 1998, Ledoux *et al.* 2001, Smith & Witt 2002]. Plus récemment, [Duley 2009] a suggéré que l'ERE pourrait ne pas être entièrement due à de la photoluminescence, mais pourrait résulter de la combinaison de PL et d'émission thermique par des agrégats/molécules de carbone déshydrogénés. Jusqu'à présent, aucun de ces candidats ne vérifie clairement toutes les contraintes imposées par les observations de l'ERE (cf. [Witt & Vijh 2004] pour une revue des différents candidats et des arguments associés). L'identification des porteurs associés reste donc ouverte.

Les caractéristiques spectrales de l'ERE (comme la position et largeur de la bande) et leur variation avec les conditions physiques des environnements observés (comme l'intensité du champ de rayonnement) imposent des contraintes que les porteurs de l'ERE doivent vérifier. En plus, des propriétés de l'ERE décrites ci-dessus, l'estimation de son rendement de PL constitue une contrainte observationnelle forte. Le rendement de photoluminescence  $\eta$  est défini comme le rapport du nombre de photons émis sur le nombre de photons absorbés par les porteurs de l'ERE. Ce rendement est le rendement quantique (qui peut dépasser 100% si plusieurs photons sont émis à la suite de l'absorption d'un photon énergétique) et ne doit pas être confondu avec le rapport des énergies correspondantes ( $\leq 1$ ). L'estimation du rendement à partir des observations de l'ERE n'est pas évidente et nécessite différentes hypothèses. [Smith & Witt 2002] ont estimé des limites inférieures de rendements<sup>8</sup> variant entre 0.1% et 10% (il faut noter que, par la même méthode, un rendement supérieur à 20% est déterminé pour le Rectangle Rouge, mais les auteurs ont décidé de traiter le cas de cette nébuleuse à part). Ces rendements semblent augmenter lorsque le champ de rayonnement local devient moins intense (cf. Fig. 2.9, en bas à droite). Le rendement le plus fort correspond donc au milieu interstellaire diffus (où le rayonnement incident est l'ISRF,  $U = 1$ ) avec  $\eta \gtrsim 10\%$  [Gordon *et al.* 1998]. L'intensité de l'ERE dans le MIS diffus est cependant très faible (cf. Figs. 2.8 et 2.9) à cause du faible flux de photons

120 nm, or ces valeurs correspondent à une largeur de bande  $\Delta q$  définie (par [Witt & Boroson 1990]) comme la différence entre les 3<sup>e</sup> et le 1<sup>er</sup> quartiles du flux de la bande. Dans le cas d'une gaussienne :  $\Delta q = 0.57 \cdot FWHM$

7. L'ERE résulte d'une excitation par l'absorption de rayonnement probablement dans le domaine UV proche et visible [Witt *et al.* 2006, Witt *et al.* 2009].

8. Les valeurs estimées sont des limites inférieures car elles sont déterminées en considérant les photons absorbés par toute la poussière, pas uniquement par les porteurs de l'ERE.

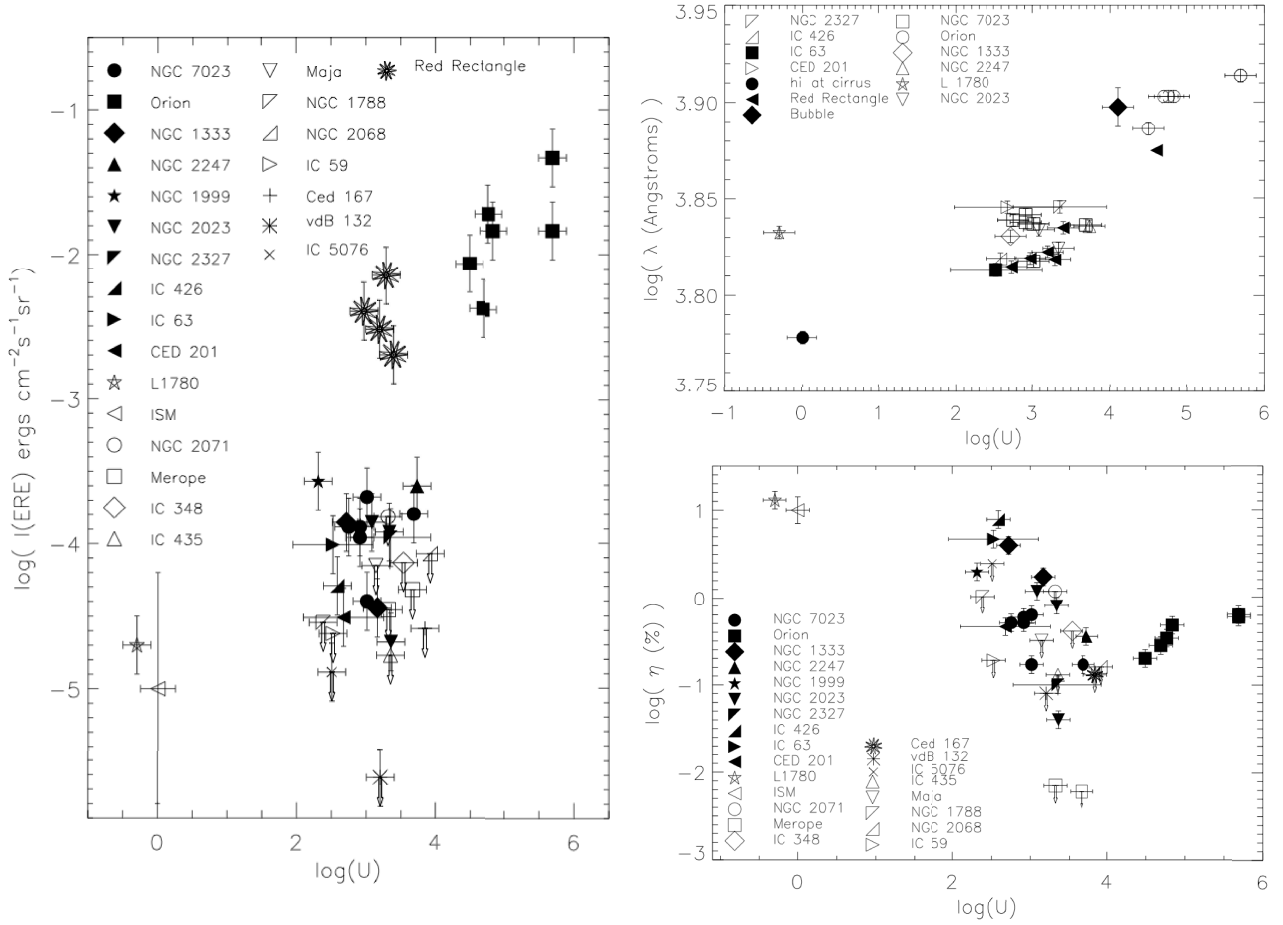


FIGURE 2.9 – **Propriétés de l'ERE en fonction de la densité d'énergie  $U$  du champ de rayonnement incident.**  $U$  est normalisé à la valeur de la densité du rayonnement interstellaire standard (ISRF,  $U_{\text{ISRF}} = 9.7 \cdot 10^{-15} \text{ J/m}^3$ ). Ces figures montrent que lorsque le rayonnement devient plus intense, l'ERE devient plus intense (à gauche) mais avec un rendement plus faible (en bas à droite), et sa bande se déplace vers les plus grandes longueurs d'onde (en haut à droite). Source : [Smith & Witt 2002].

généralisant cette émission (ISRF). La figure 2.8 montre d'ailleurs que l'émission recherchée est plus de deux ordres de grandeur moins intense que le niveau du fond de ciel. Les observations de l'ERE dans le MIS diffus sont donc difficiles.

La comparaison des propriétés de photoluminescence d'une composante de la poussière carbonée avec les caractéristiques de l'émission rouge étendue fera l'objet du chapitre 7.

### 2.3.3 Polarisation

Le rayonnement des étoiles ayant interagit avec la poussière est partiellement polarisé. Les mesures de polarisation peuvent permettre de contraindre la nature des poussières interstellaires. En effet, la présence de lumière polarisée indique la présence de grains non sphériques, avec des propriétés magnétiques permettant un alignement avec le champ magnétique (et bien sûr la présence d'un champ magnétique). La polarisation résulte du fait que le rayonnement est alors préférentiellement éteint dans certaines directions.

La polarisation dépend de la longueur d'onde (loi de Serkowski, [Serkowski *et al.* 1975]). Un maximum de polarisation est observé dans le visible, variant d'une ligne de visée à une autre, oscillant autour d'une valeur moyenne de  $0.55 \mu\text{m}$ . La position de ce pic de polarisation indique que la majorité des grains alignés avec le champ magnétique ont des tailles typiques de  $a \sim \lambda/2\pi \sim 0.1 \mu\text{m}$ . La décroissance de la fraction de polarisation depuis le visible vers l'UV [Clayton *et al.* 1995, Anderson *et al.* 1996, Wolff *et al.* 1997, Bastien 2007] implique que les petits grains (responsables de l'extinction dans l'UV) ne sont pas alignés avec le champ magnétique ou ne sont pas allongés. De plus, l'émission thermique des gros grains dans l'infrarouge lointain et le submillimétrique est polarisée avec un taux de polarisation de l'ordre de 10% [Dotson *et al.* 2000, Lai *et al.* 2001]. Le fait que la bande à  $9.7 \mu\text{m}$  soit aussi polarisée conforte l'idée que les silicates existent sous forme de gros grains. Aucune polarisation n'a été détectée concernant la bande à  $3.4 \mu\text{m}$  et seulement une limite supérieure a pu être estimée [Adamson *et al.* 1999, Chiar *et al.* 2006, Mason *et al.* 2007].

## 2.4 Formation et évolution de la poussière interstellaire

La physique et chimie du milieu interstellaire sont en partie gouvernées par la présence et les propriétés des poussières (§2.1). Or, ce sont les conditions physiques du MIS qui ont un impact sur l'évolution de cette phase solide. Ainsi, le cycle de la matière interstellaire décrit au chapitre précédent est intimement lié à celui des poussières schématisé sur la Figure 2.10.

### 2.4.1 Formation

#### Etoiles évoluées

Les poussières sont en grande partie formées par les étoiles en fin de vie. Les étoiles ayant des masses moyennes ou faibles subissent une perte de masse importante à la fin de leur vie, notamment pendant la phase AGB (pour *Asymptotic Giant Branch*). Les vents stellaires des



étoiles évoluées permettent la formation de nouvelles poussières dans ces enveloppes circumstellaires en expansion. La nucléation de noyaux réfractaires solides a lieu lorsque la pression est suffisamment haute ( $\sim 10^{-5}$  -  $10^{-3}$  Pa) et la température suffisamment basse ( $\sim 2500$  -  $1000$  K). Ces grains nouvellement formés vont ensuite pouvoir croître par condensation du gaz à leur surface [Gail & Sedlmayr 1999, Patzer 2004]. La pression de radiation due à l'étoile centrale peut balayer les particules suffisamment grosses, permettant ainsi leur injection dans le milieu interstellaire [Jones *et al.* 1997].

La nature des matériaux ainsi formés dépend de plusieurs paramètres comme la température et la pression, contrôlées par l'étoile et sa perte de masse, mais aussi le rapport de l'abondance du carbone par rapport à celle de l'oxygène. En effet, la molécule CO est une espèce facile à former, thermodynamiquement et photochimiquement très stable. Si l'oxygène est plus abondant que le carbone ( $C/O < 1$ ), ce dernier sera presque entièrement sous forme de monoxyde de carbone, et seul l'oxygène sera disponible pour former des poussières (silicates et oxydes). Dans les enveloppes riches en carbone ( $C/O > 1$ ), l'inverse se produit et des poussières majoritairement carbonées sont formées. La bande d'émission à  $10\ \mu\text{m}$  des silicates est ainsi observée dans les enveloppes froides riches en oxygène mais pas dans celles riches en carbone. Des carbones amorphes sont par contre observés autour d'étoiles riches en carbone sous forme d'un continuum d'émission à l'équilibre avec le champ de rayonnement [Hony 2002, Chen *et al.* 2010]. Dans la pratique, les étoiles riches en oxygène peuvent devenir riches en carbone à un stade d'évolution plus avancé [Chan & Kwok 1988], et la poussière circumstellaire est souvent un mélange de poussières riches en carbone et riches en oxygène. Des observations d'enveloppes circumstellaires riches en oxygène ont permis de montrer l'influence du taux de perte de masse des étoiles : suivant que la perte de masse est faible, forte, ou très élevée ( $\gtrsim 10^{-5}\ M_{\odot}$ ), les poussières formées dans l'enveloppe qui se refroidit seront préférentiellement des oxydes, des silicates amorphes, ou des silicates cristallins [Sogawa & Kozasa 1999, Posch *et al.* 2002, Cami 2002, Molster & Kemper 2005]. [Waters 2004] présente une revue sur la poussière formée dans les enveloppes d'étoiles évoluées.

## Supernovae

Les étoiles les plus massives ( $\gtrsim 8\ M_{\odot}$ ) terminent leur vie en explosant en supernovae. D'énormes quantités de matière, contenant notamment des atomes très lourds, sont alors éjectées. Il est possible que des poussières soient formées au cours de ce processus, mais le taux de production de poussières par les supernovae est mal connu [Wooden *et al.* 1993, Sugerman *et al.* 2006, Bianchi & Schneider 2007, Kozasa *et al.* 2009, Cherchneff 2010], notamment parce que les supernovae détruisent aussi la poussière [Arendt *et al.* 2010, Dwek *et al.* 2008].

Les plus résistantes de ces poussières produites par les supernovae sont retrouvées dans les résidus des météorites dissoutes à l'acide, et constituent une partie des grains présolaires. L'analyse de ces grains présolaires (formés de diamant, graphite, SiC,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Si}_3\text{N}_4$ ) permet de contraindre leur origine, notamment grâce aux rapports isotopiques [Clayton & Nittler 2004].

### Milieu interstellaire

Des modèles d'évolution de la poussière ont permis d'estimer que le temps caractéristique de destruction des grains interstellaires dans les chocs est de quelques  $10^8$  ans [Jones *et al.* 1994, Jones *et al.* 1996]. Or, le temps nécessaire pour alimenter le milieu interstellaire en poussières formées par les étoiles est estimé à  $3 \times 10^9$  ans, c'est-à-dire que les modèles prédisent que la poussière est détruite dix fois plus vite dans le milieu interstellaire qu'elle n'est produite dans les enveloppes circumstellaires. Cela indique que cette destruction des poussières n'est pas aussi homogène dans la Galaxie ou bien qu'il existe des processus de formation efficaces dans le milieu interstellaire pour contrebalancer cette rapide destruction dans les chocs, et que la poussière est rapidement recyclée dans le MIS. Les conditions de température et de pression du milieu interstellaire ne semblent cependant pas favorables à la formation de particules solides. Toutefois, l'accrétion d'éléments du gaz sur des grains existants est possible. Notamment, des éléments lourds, envoyés en phase gazeuse par le passage de chocs dans le milieu interstellaire, peuvent éventuellement se condenser à nouveau à la surface des grains restants [Zhukovska *et al.* 2008, Draine 2009]. Ce mécanisme devrait cependant aboutir à la production efficace de SiC et de composés formés à la fois de silicate et de carbone, ce qui ne semble pas compatible avec les observations [Jones & Nuth 2011]. Une récente ré-évaluation des temps de vie et de destruction des poussières par [Jones & Nuth 2011] montre que, contrairement aux grains carbonés, les grains de silicates ne sont pas nécessairement reformés dans le MIS. Ce résultat est toutefois controversé [Draine 2009].

#### 2.4.2 Evolution

Les propriétés physiques et chimiques des poussières dans le MIS sont sensibles aux conditions de l'environnement dans lequel elles se trouvent. Ainsi, des processus auxquels elles sont soumises au cours de leur voyage dans la Galaxie, comme par exemple l'irradiation par les photons, par les ions et électrons ou les variations de températures peuvent entraîner une modification plus ou moins profonde du matériau et de ses propriétés. Il est donc important de caractériser ces processus d'évolution afin de contraindre à la fois les propriétés des poussières dans différents environnements, mais aussi celles des sources d'énergie et processus à l'origine de cette évolution.

Plusieurs observables montrent qu'il existe nécessairement des mécanismes modifiant certaines composantes de la poussière. Par exemple, la part de silicates cristallins observée dans le milieu interstellaire est beaucoup plus faible que celle résultant des vents d'étoiles évoluées. Cela montre qu'il existe un processus d'amorphisation efficace dans le MIS. Des expériences d'irradiation de silicates cristallins ont permis de montrer que les rayons cosmiques ou les chocs semblent être les responsables de cette amorphisation [Carrez *et al.* 2002a, Carrez *et al.* 2002b, Demyk *et al.* 2004, Brucato *et al.* 2004]. Des silicates cristallins sont observés dans les disques autour d'étoiles en formation, résultant probablement de processus de chauffage ou d'irradiation énergétique (UV, protons, ...).

L'incorporation des grains du MIS diffus dans les régions plus denses, protégées du rayonne-



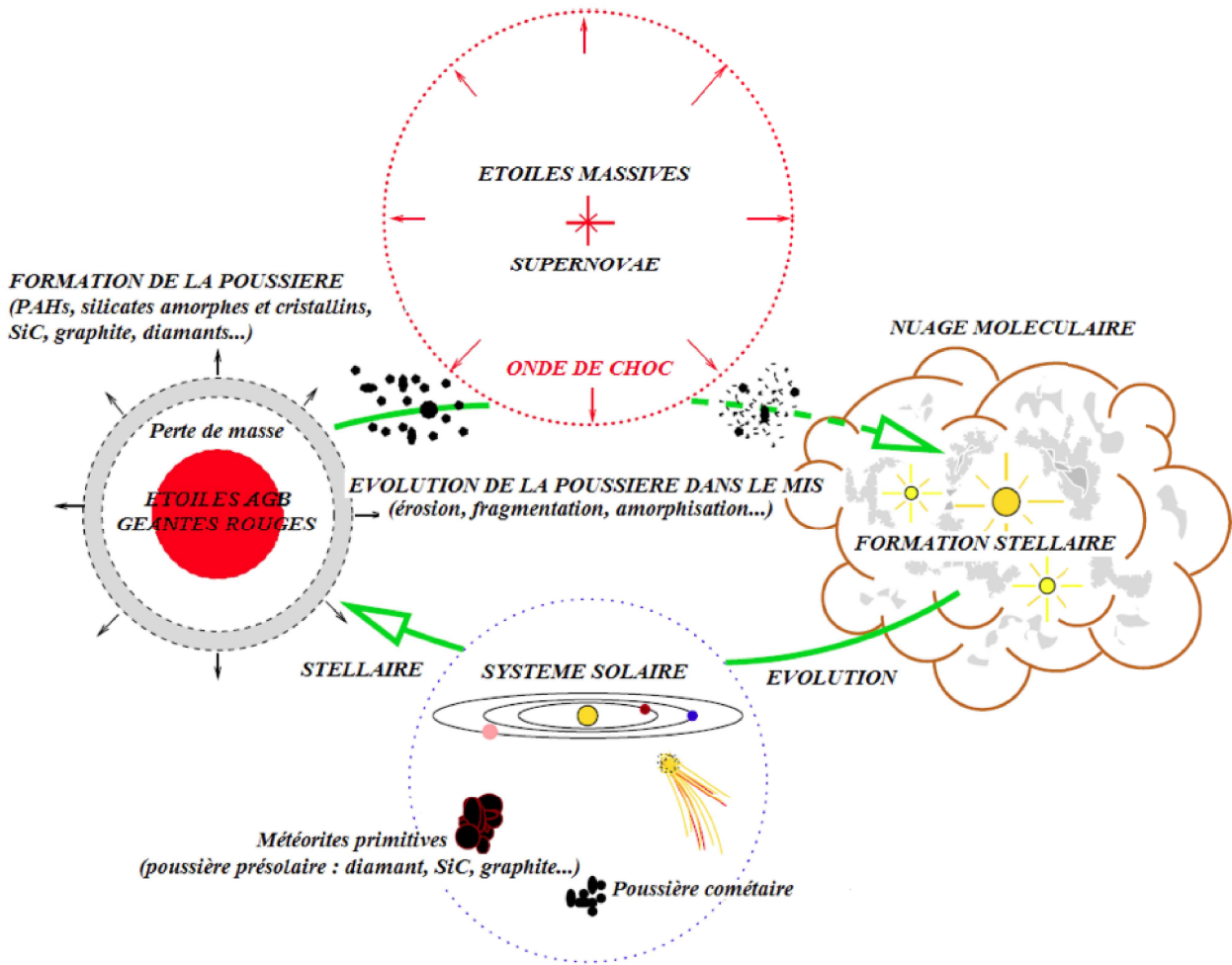


FIGURE 2.10 – Cycle des poussières interstellaires. Schéma adapté de [Jones 2004].

ment intense, fait apparaître un manteau de glace à leur surface. Divers processus énergétiques peuvent mener à la formation de résidus organiques à partir de ces glaces, et ainsi produire des molécules complexes [Greenberg *et al.* 1995, Muñoz Caro *et al.* 2004, de Marcellus *et al.* 2011]. Au contraire, certaines composantes de la poussière disparaissent dans les nuages denses. La bande à  $3.4\ \mu\text{m}$  traçant les carbones amorphes hydrogénés est ainsi largement observée dans le milieu diffus, mais n'est plus visible dans les régions denses, indiquant une évolution de ce type de poussières entre ces deux phases interstellaires. De plus, dans les nuages denses et les disques, l'accrétion du gaz sur les grains modifie leur structure, mais c'est surtout la coagulation des grains entre eux qui fait augmenter leur taille. La modification des propriétés d'extinction et d'émission des grains que l'on peut observer [Bernard *et al.* 1999, del Burgo *et al.* 2003, Stepnik *et al.* 2003] résulte de cette croissance des grains. Dans les disques, la coagulation des grains peut éventuellement mener à la formation de planétésimaux (comètes, astéroïdes, planètes).

Dans le milieu interstellaire, le passage d'ondes de choc peut altérer et détruire les poussières. Les grains peuvent être vaporisés ou fragmentés par les collisions grain-grain, aboutissant à une injection d'atomes lourds dans la phase gazeuse et à la redistribution des tailles de grains interstellaires. Les collisions gaz-grain provoquent l'érosion des poussières par les atomes et les ions du gaz (*sputtering*) [Jones *et al.* 1994, Jones *et al.* 1996, Dwek *et al.* 1996, Guillet *et al.* 2009]. Les différentes composantes de poussières interstellaires sont altérées différemment par le passage de chocs [Serra Díaz-Cano & Jones 2008, Micelotta *et al.* 2010].

Nous avons vu dans ce chapitre le rôle important joué par la poussière dans le MIS mais aussi le fait que ce constituant interstellaire majeur n'est pas encore complètement connu. Beaucoup d'informations sont encore manquantes concernant la composition précise de ces poussières, leur forme, leur taille, leur distribution dans la Galaxie, leur formation et évolution, l'attribution de leurs signatures dans les différents domaines spectraux, etc. Découvrir petit à petit les pièces manquantes afin de mieux comprendre les poussières et le milieu interstellaire dans leur globalité constitue un enjeu majeur de la recherche en astrophysique. Des modèles et des expériences sont ainsi développés pour tenter de comprendre et de reproduire les contraintes imposées par les observations (déplétions, extinction, émission, polarisation, cohérence par rapport aux processus de formation et de destruction, ...). Au cours de cette thèse, c'est à l'une des composantes de la poussière interstellaire carbonée, les carbones amorphes hydrogénés, que je me suis consacrée. Différentes problématiques soulevées dans ce chapitre et le précédent, concernant cette composante de la poussière, ont été explorées pendant ces trois années de thèse. Avant de présenter ces travaux, les carbones amorphes hydrogénés du milieu interstellaire, qui constituent le fil conducteur de cette thèse, seront décrits dans le prochain chapitre.



# Les carbones amorphes hydrogénés du milieu interstellaire

## Sommaire

<b>3.1</b>	<b>Signatures spectrales dans l'infrarouge . . . . .</b>	<b>43</b>
3.1.1	Bande d'absorption interstellaire à 3.4 $\mu\text{m}$ . . . . .	43
3.1.2	Contribution dans l'IR moyen : bandes d'absorption à 6.85 et 7.25 $\mu\text{m}$ . .	47
3.1.3	En émission ? . . . . .	47
<b>3.2</b>	<b>Distribution de cette composante de la poussière . . . . .</b>	<b>48</b>
3.2.1	Observations dans le milieu interstellaire diffus de la Voie Lactée . . . . .	48
3.2.2	Absence dans les régions denses . . . . .	51
3.2.3	Détections extragalactiques . . . . .	52
<b>3.3</b>	<b>Contraintes observationnelles sur la structure des a-C:H . . . . .</b>	<b>53</b>
3.3.1	Rapport CH <sub>2</sub> /CH <sub>3</sub> . . . . .	53
3.3.2	Contribution des carbones aromatiques . . . . .	53
3.3.3	Hétéroatomes . . . . .	54
3.3.4	Contenu en hydrogène . . . . .	55
3.3.5	Structures proposées des a-C:H interstellaires . . . . .	58
<b>3.4</b>	<b>Sous quelle forme ? . . . . .</b>	<b>59</b>
3.4.1	Lien avec les silicates . . . . .	59
3.4.2	Mesure de polarisation . . . . .	59
<b>3.5</b>	<b>Part importante de la poussière interstellaire . . . . .</b>	<b>59</b>
<b>3.6</b>	<b>Formation et évolution . . . . .</b>	<b>61</b>
<b>3.7</b>	<b>Analogues de laboratoire . . . . .</b>	<b>62</b>

## 3.1 Signatures spectrales dans l'infrarouge

### 3.1.1 Bande d'absorption interstellaire à 3.4 $\mu\text{m}$

#### En direction du centre galactique

Une bande d'absorption centrée autour de 3.4  $\mu\text{m}$  (Fig. 3.2 a) a été découverte il y a plus

de 30 ans en direction du centre galactique (GC pour *Galactic Center*) [Soifer *et al.* 1976], [Willner *et al.* 1979], [Wickramasinghe & Allen 1980], [Allen & Wickramasinghe 1981]. De nombreuses observations dans cette direction (et en particulier vers la source infrarouge GC IRS7) ont suivi afin de mieux caractériser cette signature spectrale interstellaire [Jones *et al.* 1983], [Wickramasinghe & Allen 1983, Butchart *et al.* 1986, McFadzean *et al.* 1989]. Il est alors apparu que cette large bande d'absorption présente une sous-structure, avec notamment des maxima d'absorption à 3.41 et 3.48  $\mu\text{m}$ . [McFadzean *et al.* 1989] ont observé différentes sources vers le centre galactique (IRS3, IRS7, IRS12, IRS19). Des profondeurs optiques à 3.4  $\mu\text{m}$  similaires ont été détectées parmi ces sources, mais la profondeur de la glace d'eau à 3.1  $\mu\text{m}$  est apparue très variable (Fig. 3.2 b). Cela a mis en évidence le fait que ces deux composantes n'étaient pas corrélées et résultaient probablement de régions interstellaires différentes. La bande d'absorption autour de 3.4  $\mu\text{m}$  semble donc provenir du MIS diffus alors que la glace d'eau trouve son origine dans les régions les plus denses présentes le long de la ligne de visée. Le centre galactique, situé à environ 8 kpc du Soleil [Groenewegen *et al.* 2008, Matsunaga *et al.* 2009], offre donc de longues lignes de visée où les quantités de poussières et d'extinction dues au milieu interstellaire diffus sont importantes. L'observation de la bande à 3.4  $\mu\text{m}$  est donc facilitée vers le centre galactique mais pourrait être possible ailleurs dans la Galaxie.

### En dehors du centre galactique

La question de savoir si les porteurs de cette signature spectrale étaient distribués dans l'ensemble de la Galaxie a mis en avant la nécessité de sonder le milieu interstellaire diffus au travers d'autres lignes de visée que celles vers le centre galactique. [Tapia *et al.* 1989] ont donc recherché cette bande d'absorption dans le spectre observé en direction d'étoiles de champ hautement rougies, mais les spectres obtenus n'ont pas permis d'établir de détection claire (la présence d'une bande à 3.4  $\mu\text{m}$  est cependant possible en direction de l'étoile Lynga 8-IRS3). Malgré un spectre avec un faible rapport signal/bruit, [Adamson *et al.* 1990] ont détecté une faible bande d'absorption à 3.4  $\mu\text{m}$  en direction de l'étoile brillante VI Cygni OB2 #12 (Fig. 3.2 c). [Sandford *et al.* 1991] puis [Pendleton *et al.* 1994] ont observé cette signature en direction de différentes sources, du centre galactique ou d'autres régions de la Voie Lactée, permettant de mieux contraindre la distribution galactique de cette composante de la poussière. Les années suivantes, la bande à 3.4  $\mu\text{m}$  a été détectée dans d'autres lignes de visée de la Voie Lactée [Imanishi *et al.* 1996, Ishii *et al.* 2002, Rawlings *et al.* 2003], puis dans d'autres galaxies (cf. Fig. 3.2 d et e, §3.2.3). Les lignes de visées galactiques le long desquelles la bande à 3.4  $\mu\text{m}$  a été détectée sont présentées sur la Fig. 3.1.

### Origine

Les porteurs de cette bande interstellaire ont rapidement été associés à des matériaux organiques. Les bandes d'absorption autour de 3.4  $\mu\text{m}$  sont en effet attribués aux vibrations d'élongation des liaisons C-H aliphatiques dans les groupements méthyle ( $-\text{CH}_3$ ) et méthylène ( $-\text{CH}_2-$ ) de la poussière carbonée [Duley & Williams 1983]. Les modes d'élongation asymétriques sont situés à environ 3.38  $\mu\text{m}$  ( $2955\text{ cm}^{-1}$ , groupements  $-\text{CH}_3$ ) et 3.41  $\mu\text{m}$  ( $2925\text{ cm}^{-1}$ , groupements

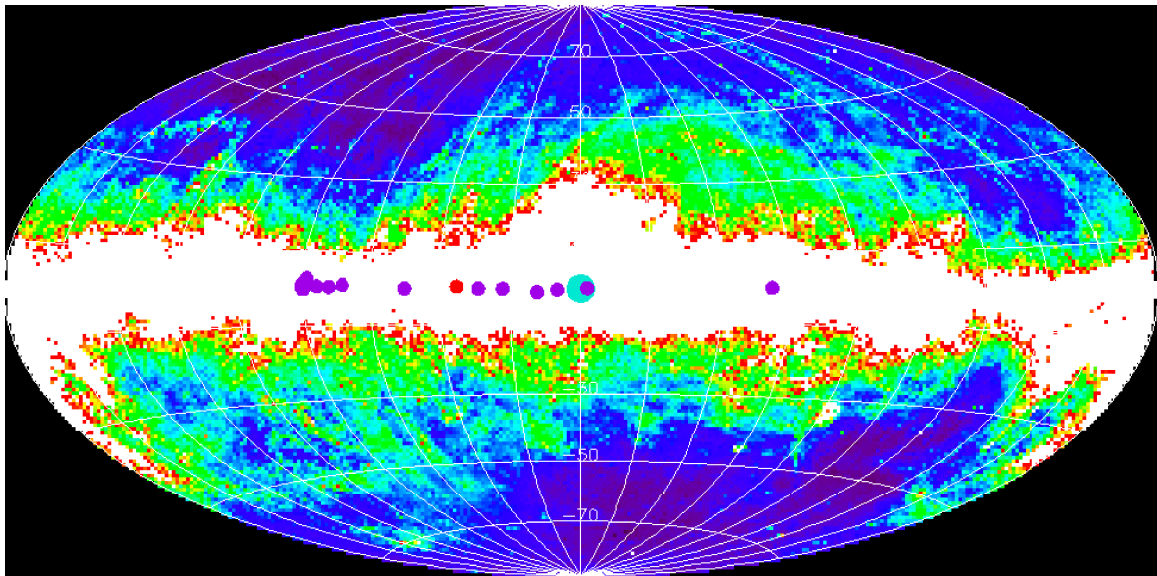


FIGURE 3.1 – Observations de la bande d’absorption à  $3.4 \mu\text{m}$  dans la Voie Lactée. La projection est une carte IRIS (image obtenue à partir des données IRAS, <http://www.cita.utoronto.ca/~mamd/IRIS/>) à  $100 \mu$  de la Voie Lactée. Chaque point correspond à une ligne de visée le long de laquelle la bande d’absorption à  $3.4 \mu\text{m}$  a été observée : le point turquoise correspond aux lignes de visée vers le centre galactique, le point rouge désigne la ligne de visée vers IRAS 18511+0146 dont les observations sont présentées dans le chapitre 4, et les autres directions galactiques où cette signature spectrale a été détectée sont en violet.

-CH<sub>2</sub>-), tandis que les bandes à  $3.48 \mu\text{m}$  ( $2870 \text{ cm}^{-1}$ , -CH<sub>3</sub>) et  $3.50 \mu\text{m}$  ( $2855 \text{ cm}^{-1}$ , -CH<sub>2</sub>-) correspondent aux modes d’élongation symétriques. La structure de la signature interstellaire observée à  $3.4 \mu\text{m}$  correspond aux positions de ces modes d’élongation (cf. la décomposition de la bande interstellaire en ses différents modes sur la Figure 3.2 d). Le mode à  $3.50 \mu\text{m}$  n’est souvent visible que par un épaulement dans l’aile du mode à  $3.48 \mu\text{m}$ <sup>1</sup>. Dès la découverte de cette bande d’absorption, différents matériaux contenant ces liaisons C-H aliphatiques sont proposés comme porteurs (cf. §3.7). Les carbones amorphes hydrogénés, appelés HAC (pour *Hydrogenated Amorphous Carbons*) ou a-C:H (terme utilisé par les physiciens pour désigner un matériau amorphe formé de carbone et d’hydrogène) sont parmi ces premiers candidats [Duley & Williams 1983, Ogmen & Duley 1988]. Nous verrons au cours de ce chapitre que ce sont effectivement les a-C:H qui reproduisent le mieux les signatures spectrales de cette composante de la poussière carbonée (cf. comparaison entre observations et spectre d’a-C:H sur la Figure 3.2 a,d).

1. Une asymétrie du mode à  $2925 \text{ cm}^{-1}$  requiert une bande additionnelle autour de  $2900 \text{ cm}^{-1}$  probablement due soit à une résonance de Fermi ou des harmoniques impliquant les modes de déformation [Dartois *et al.* 2005].

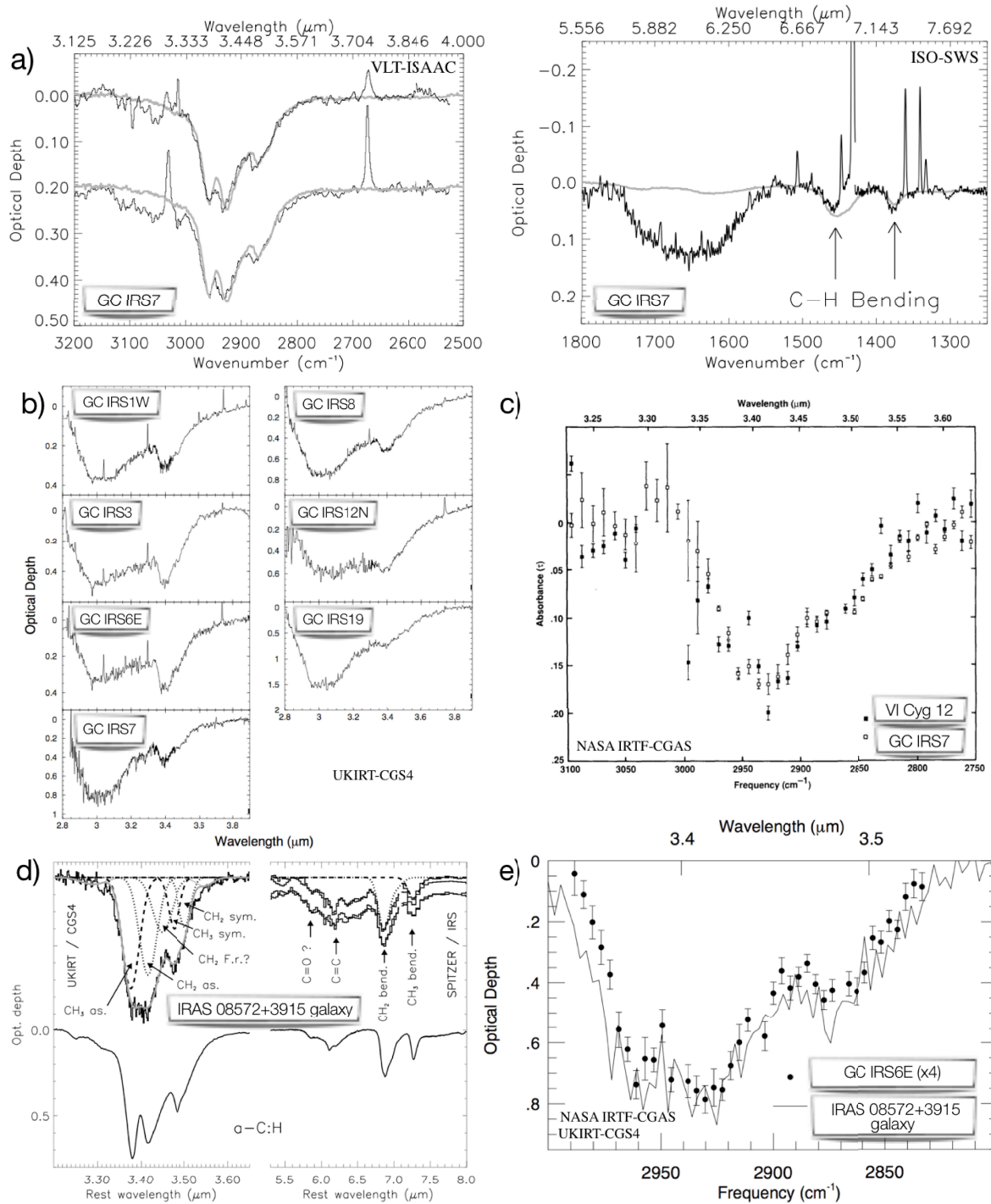


FIGURE 3.2 – Observations des  $\alpha$ -C:H du milieu interstellaire diffus galactique et extragalactique. *a)* Bandes à 3.4, 6.85 et 7.25  $\mu\text{m}$  observées vers la source GC IRS 7 du centre galactique par [Dartois *et al.* 2004b] et comparées au spectre d' $\alpha$ -C:H photoproduits à basse température (en gris). *b)* Bande à 3.4  $\mu\text{m}$  superposée sur la profondeur optique de la glace d'eau observée en direction de diverses sources du centre galactique [Chiar *et al.* 2002]. *c)* et *e)* Comparaison du profil de la bande à 3.4  $\mu\text{m}$  vers le centre galactique avec celui observé vers VI Cygni OB2 #12 [Sandford *et al.* 1991] et dans une autre galaxie [Pendleton & Allamandola 2002]. *d)* Observation extragalactique décomposée en différents modes de vibration et comparée au spectre d' $\alpha$ -C:H photoproduits à basse température [Dartois *et al.* 2007].



### 3.1.2 Contribution dans l'IR moyen : bandes d'absorption à 6.85 et 7.25 $\mu\text{m}$

L'identification des modes de vibration de la bande à 3.4  $\mu\text{m}$  prédit la présence d'autres bandes d'absorption dans les spectres du milieu interstellaire diffus. En effet, les liaisons C-H des hydrocarbures aliphatiques présentent des modes de pliage à 6.85  $\mu\text{m}$  ( $1460\text{ cm}^{-1}$ , groupements  $-\text{CH}_2-$  et  $-\text{CH}_3$  (asymétrique)) et 7.25  $\mu\text{m}$  ( $1380\text{ cm}^{-1}$ , pliage symétrique des groupements  $-\text{CH}_3$ ). L'atmosphère étant opaque à ces longueurs d'onde, de telles observations ne sont pas possibles depuis le sol. [Tielens *et al.* 1996] ont donc utilisé le Kuiper Airborne Observatory, un télescope à bord d'un avion stratosphérique, pour observer le centre galactique entre 5 et 8  $\mu\text{m}$ . Une bande à 6.8  $\mu\text{m}$  a effectivement été observée, mais la plus faible bande à 7.3  $\mu\text{m}$  n'a pu être détectée. Les télescopes spatiaux tels que ISO (*Infrared Space Observatory*) ou Spitzer ont aussi permis d'étendre les mesures de spectres à l'infrarouge moyen. L'observation grâce à ces instruments de lignes de visée où la bande d'absorption à 3.4  $\mu\text{m}$  avait été détectée a permis de révéler ces bandes d'absorption additionnelles, associées aux porteurs de la bande à 3.4  $\mu\text{m}$ , dans les régions où elles sont suffisamment fortes pour être détectées (Fig. 3.2 a,d). Ainsi, les bandes à 6.85 et 7.25  $\mu\text{m}$  ont été observées vers le centre galactique [Chiar *et al.* 2000, Dartois *et al.* 2004a]. Le long des autres lignes de visée galactiques, les intensités de ces bandes, plus faibles que celle de la bande à 3.4  $\mu\text{m}$ , ne sont pas suffisantes pour qu'elles aient été détectées [Whittet *et al.* 1997]. Les seules autres directions où les bandes à 6.85 et 7.25  $\mu\text{m}$  ont été observées sont des lignes de visée sondant d'autres galaxies [Spoon *et al.* 2004, Dartois *et al.* 2004a, Dartois *et al.* 2007, Dartois & Muñoz-Caro 2007]. Ces observations des contributions des liaisons C-H aliphatiques dans l'IR moyen ont permis de mieux contraindre leur origine [Pendleton & Allamandola 2002], et l'hypothèse des carbones amorphes hydrogénés comme porteurs de ces signatures spectrales a ainsi été confirmée [Dartois *et al.* 2004b, Dartois *et al.* 2007, Dartois & Muñoz-Caro 2007]. Les observations de cette gamme de longueurs d'onde ont aussi permis d'avoir accès au contenu en hétéroatomes comme l'oxygène des a-C:H interstellaires (cf. §3.3.3).

### 3.1.3 En émission ?

On peut se demander si ces matériaux hydrocarbonés sont visibles en émission dans certains environnements interstellaires. L'émission correspondant aux modes de vibrations des liaisons C-H aliphatiques est en effet observée dans certaines sources où les AIB sont présentes. Les bandes d'émission aromatiques étant observées avec différents profils et intensités relatives d'une source à l'autre, les sources où les AIB sont observées sont classées en trois catégories (A, B ou C) [Peeters *et al.* 2002]. Une variation progressive des propriétés de certaines des bandes d'émission est observée entre ces classes (par exemple, la bande d'émission observée autour de 6.2  $\mu\text{m}$  dans les sources classées A se décale vers 6.3  $\mu\text{m}$  pour les classes C). Les sources de classe A sont les plus facilement observables. Les classes C, plus rares car moins intenses, sont celles dans lesquelles on observe des bandes d'émission par des composantes à la fois aromatique et aliphatique.



Les bandes d'émission aliphatiques sont observées dans différents types de sources, comme dans les enveloppes d'étoiles post-AGB (*Asymptotic Giant Branch*) [Geballe & van der Veen 1990, Geballe *et al.* 1992, Goto *et al.* 2007] ou dans des nébuleuses par réflexion [Joblin *et al.* 1996]. Le profil et l'intensité de l'émission à  $3.4 \mu\text{m}$  sont variables d'une source à l'autre et sont souvent différents de ceux de l'absorption aux mêmes longueurs d'onde observée dans le MIS diffus. Ces matériaux diffèrent probablement de ceux observés dans les régions diffuses, mais permettent d'étudier le lien entre matière aliphatique et matière aromatique.

[Goto *et al.* 2003, Goto *et al.* 2007] ont observé les bandes d'émission à  $3.3$  et  $3.4 \mu\text{m}$  d'hydrocarbures aromatiques et aliphatiques dans plusieurs nébuleuses protoplanétaires riches en carbone. Les observations résolues spatialement de ces étoiles post-AGB ont permis de constater la variation de l'intensité de l'émission aliphatique par rapport à celle de l'émission aromatique avec la distance depuis l'étoile centrale (le rapport aliphatique/aromatique observé diminue en s'éloignant de l'étoile). Cette distribution spatiale pourrait refléter l'évolution des grains circumstellaires créés dans ces environnements. Les auteurs proposent deux scénarios différents pouvant expliquer cette distribution spatiale. Les grains les plus éloignés de l'étoile centrale étant les plus anciens et donc ceux ayant subi l'altération la plus longue, la variation spatiale des matériaux aliphatiques en composés aromatiques pourrait être le résultat d'une altération par chauffage stochastique et/ou par photochimie (les liaisons aliphatiques étant plus fragiles à la photodissociation que les liaisons aromatiques), ou bien refléter une évolution temporelle des conditions de formation de ces grains.

## 3.2 Distribution de cette composante de la poussière

### 3.2.1 Observations dans le milieu interstellaire diffus de la Voie Lactée

Comme nous l'avons vu au §3.1.1, la bande à  $3.4 \mu\text{m}$  a été observée en direction de nombreuses sources IR du centre galactique parfois appelé Sgr A (IRS 1, GCS 3, IRS 6E, IRS7, IRS 8, IRS 12, IRS 19) [Allen & Wickramasinghe 1981, McFadzean *et al.* 1989, Sandford *et al.* 1991, Pendleton *et al.* 1994, Chiar *et al.* 2000, Chiar *et al.* 2002, Dartois *et al.* 2004a, Chiar *et al.* 2006]. Les observations de cette composante aliphatique de la poussière dans d'autres lignes de visée galactiques [Adamson *et al.* 1990, Sandford *et al.* 1991, Pendleton *et al.* 1994, Imanishi *et al.* 1996, Whittet *et al.* 1997, Ishii *et al.* 2002, Rawlings *et al.* 2003] ont permis de comparer le comportement de la profondeur optique  $\tau_{3.4}$  de la bande à  $3.4 \mu\text{m}$  avec les variations de l'extinction visuelle  $A_V$ .

La Figure 3.3 montre que  $\tau_{3.4}$  est corrélée et augmente avec  $A_V$ , comme attendu pour une composante de la poussière existant dans le MIS diffus de la Galaxie. [Sandford *et al.* 1991] ont remarqué que cette augmentation n'est pas linéaire sur toute la gamme de l'extinction, mais est plus forte pour les plus hautes valeurs de  $A_V$  correspondant aux observations vers le centre galactique ( $A_V \approx 30 - 35$ ). [Pendleton *et al.* 1994] ont étendu la gamme d'extinction

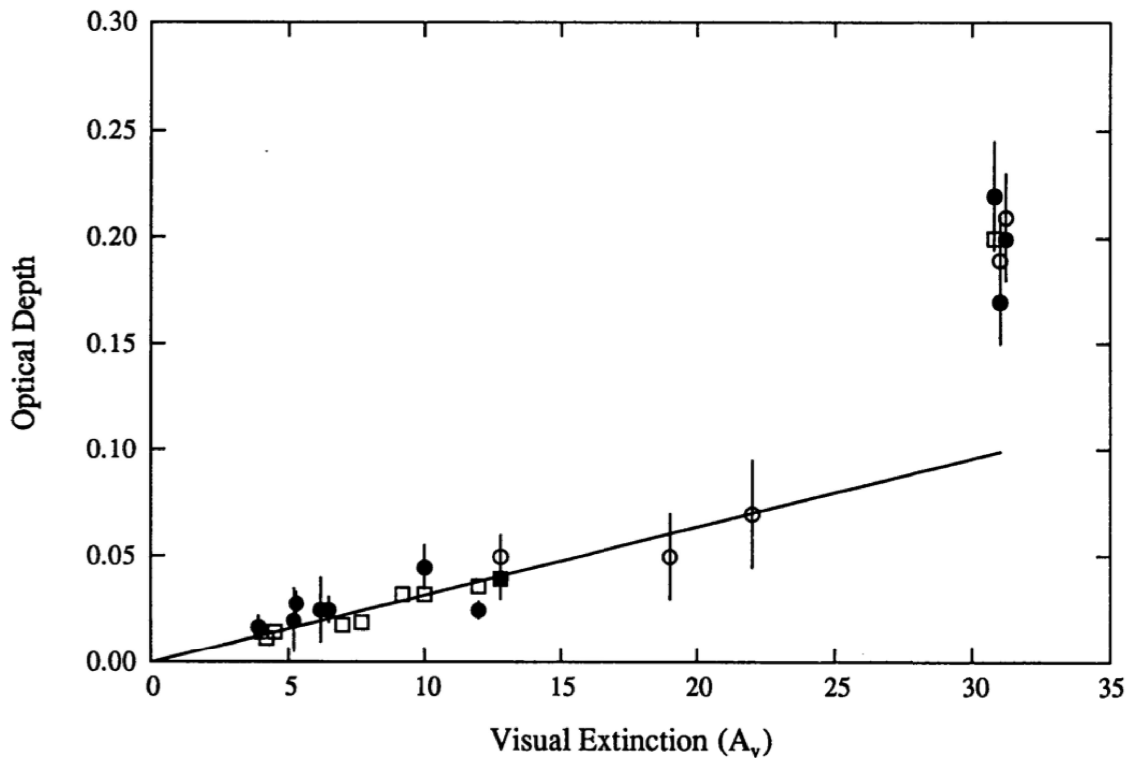


FIGURE 3.3 – Profondeur optique de la bande à  $3.4 \mu\text{m}$  en fonction de l’extinction visuelle dans la Galaxie. Les points sont les profondeurs optiques de la bande à  $3.4 \mu\text{m}$ , tandis que les carrés correspondent aux profondeurs de la bande d’absorption des silicates à  $9.7 \mu\text{m}$  multipliées par un facteur  $1/18$ . La droite correspond à  $A_V/\tau_{3.4} = 250$ . Figure issue de [Sandford *et al.* 1995].

en détectant la bande à  $3.4 \mu\text{m}$  vers des sources associées avec de plus faibles valeurs de  $A_V$ . Ils ont ainsi confirmé cette différence entre les observations vers le centre galactique et celle du MIS diffus local. Un rapport  $A_V/\tau_{3.4} \approx 250$  a été estimé pour les lignes de visée sondant le milieu interstellaire local, et les observations vers le centre galactique correspondent à  $A_V/\tau_{3.4} \approx 150$  [Pendleton *et al.* 1994, Sandford *et al.* 1995]. Des résultats similaires ont été trouvés par [Imanishi *et al.* 1996] et [Rawlings *et al.* 2003].

La cause de ce comportement n’est pas clairement établie, mais cela semble indiquer que les porteurs interstellaires de la bande des C-H aliphatiques ne correspondent pas à la composante de la poussière majoritairement responsable de l’extinction visuelle [Sandford *et al.* 1995]. Cela peut aussi être interprété comme le résultat d’une distribution non uniforme des a-C:H dans le MIS diffus de la Galaxie (c’est-à-dire une augmentation de leur densité dans la région centrale de la Voie Lactée ou bien une diminution de la concentration d’une composante de la poussière non aliphatique et générant une importante extinction visuelle). [Adamson *et al.* 1990] ont aussi proposé une différence d’hydrogénation des a-C:H pour expliquer les différentes valeurs

du rapport  $A_V/\tau_{3.4}$ . Ces matériaux sont en effet plus transparents dans le visible et possèdent une bande d'absorption à  $3.4 \mu\text{m}$  intrinsèquement plus forte lorsque leur taux d'hydrogénation est plus important (les a-C:H interstellaires seraient alors plus hydrogénés en direction du centre galactique).

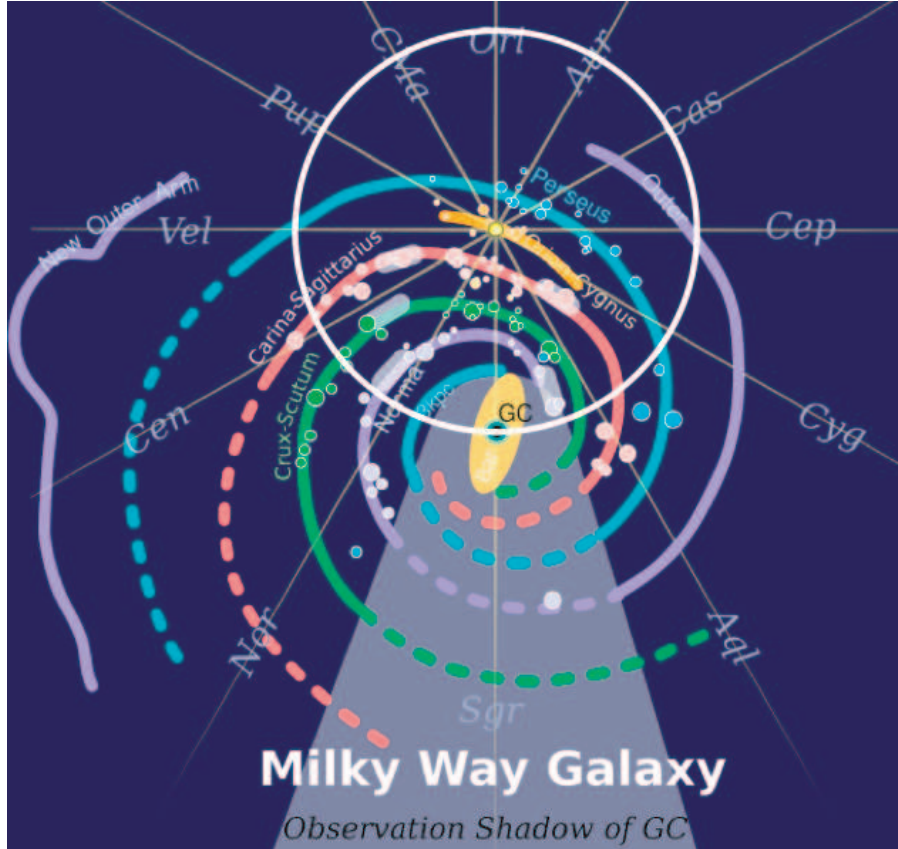


FIGURE 3.4 – **Schéma de la Voie Lactée.** Les bras galactiques sont indiqués, ainsi qu'un cercle (en blanc) centré autour du Soleil avec un rayon de 8 kpc (c'est-à-dire correspondant à  $A_V \approx 15$  en considérant l'extinction interstellaire moyenne). La géométrie de la Galaxie restreint donc les possibilités d'observation de sources lointaines.

Le rapport entre l'extinction et la profondeur optique de la bande des CH aliphatiques  $A_V/\tau_{3.4} \approx 250$  montre qu'il est difficile d'observer cette composante interstellaire. En effet, il faut observer des lignes de visée suffisamment longues pour sonder des quantités importantes de MIS diffus. L'extinction moyenne du milieu diffus de la Galaxie est d'environ 1.8 mag/kpc [Whittet 1992]. Les lignes de visée vers le centre galactique sont particulièrement éteintes, puisqu'elles correspondent à une extinction  $A_V \approx 30$  pour une distance de 8 kpc [Groenewegen *et al.* 2008, Matsunaga *et al.* 2009]. On comprend alors pourquoi très peu d'observations de la bande à  $3.4 \mu\text{m}$  existent pour des valeurs  $A_V > 15$  en dehors du centre galactique : en prenant le rapport extinction/distance moyen dans notre Galaxie, une ligne de visée

ayant  $A_V > 15$  requiert de trouver des sources à environ plus de 8 kpc du Soleil et suffisamment brillante en IR pour être observées (Fig. 3.4). Il est encore plus difficile d’observer les signatures spectrales associées dans l’IR moyen ( $A_V/\tau_{6.85} \approx 625 \pm 40$  [Dartois & Muñoz-Caro 2007]). Les a-C:H interstellaires sont donc bien plus difficiles à observer que les PAH qui requièrent des photons énergétiques et une faible densité de colonne (des  $A_V$  de l’ordre de 0.1, à comparer aux détections de la bande à  $3.4 \mu\text{m}$  pour  $A_V > 3$ ) pour émettre intensément dans les AIB. Le faible contraste des bandes aliphatiques est donc facilement masqué par l’émission des PAH, cachant probablement la présence des a-C:H dans d’autres régions interstellaires.

### 3.2.2 Absence dans les régions denses

La composante aliphatique de la poussière est omniprésente dans le milieu interstellaire diffus. Etant donné que la poussière évolue d’une phase du milieu interstellaire à l’autre au cours du temps, on aurait pu s’attendre à retrouver des signatures de cette composante carbonée importante dans les nuages denses de notre Galaxie. Or, aucune des signatures caractéristiques des a-C:H n’est observée dans les nuages interstellaires denses [Allamandola *et al.* 1992, Brooke *et al.* 1996].

La seule absorption des nuages denses observée dans la région spectrale de la bande à  $3.4 \mu\text{m}$  est une large<sup>2</sup> bande sans structure centrée à  $3.47 \mu\text{m}$  [Allamandola *et al.* 1993, Brooke *et al.* 1996, Chiar *et al.* 1996, Brooke *et al.* 1999] (cf. Fig. 3.5 à gauche). Sa forme se distingue aisément de celle centrée à  $3.4 \mu\text{m}$ , présentant une sous-structure et observée dans le MIS diffus. L’intensité de la bande à  $3.47 \mu\text{m}$  est corrélée avec celle de la glace d’eau observée à  $3.1 \mu\text{m}$  (cf. Fig. 3.5 à droite) [Brooke *et al.* 1999]. Cette bande n’est toujours pas attribuée et son origine est débattue. L’hypothèse que cette bande correspond à celle de l’élongation de la liaison C-H du carbone  $\text{sp}^3$  tertiaire (carbone tétraédrique lié à un seul atome d’hydrogène, associé aux structures proches de celles du diamant) a été proposée par [Allamandola *et al.* 1992] et [Allamandola *et al.* 1993]. [Dartois & d’Hendecourt 2001] et [Dartois *et al.* 2002] ont proposé que cette bande soit due à un mode de vibration issu de l’interaction d’un atome d’azote de  $\text{NH}_3$  avec une liaison OH de la glace d’eau, formant ainsi un hydrate d’ammoniaque. Le travail expérimental de [Mennella 2008, Mennella 2010] suggère que la bande à  $3.47 \mu\text{m}$  soit activée lorsque, dans les régions denses, des grains carbonés couverts par une couche de glace d’eau sont exposés à des atomes d’hydrogène. Cependant, le travail récent de [Bottinelli *et al.* 2010] semble confirmer la présence de glace d’ammoniac dans les manteaux interstellaires, ce qui appuierait l’idée que cette bande coïncide avec la présence d’un hydrate d’ammoniaque dans la glace.

La présence importante des carbones amorphes hydrogénés dans le MIS diffus et leur apparente disparition dans les régions denses est intrigante, notamment parce que le temps caractéristique pour passer du milieu diffus à un nuage dense est relativement court ( $\approx 3 \times 10^7$

---

2. FWHM  $\approx 0.1 \mu\text{m}$ , à comparer avec une largeur de  $30 \text{ cm}^{-1}$  ( $0.03\text{-}0.04 \mu\text{m}$ ) environ pour les modes asymétriques de la bande à  $3.4 \mu\text{m}$  [Dartois *et al.* 2004b]

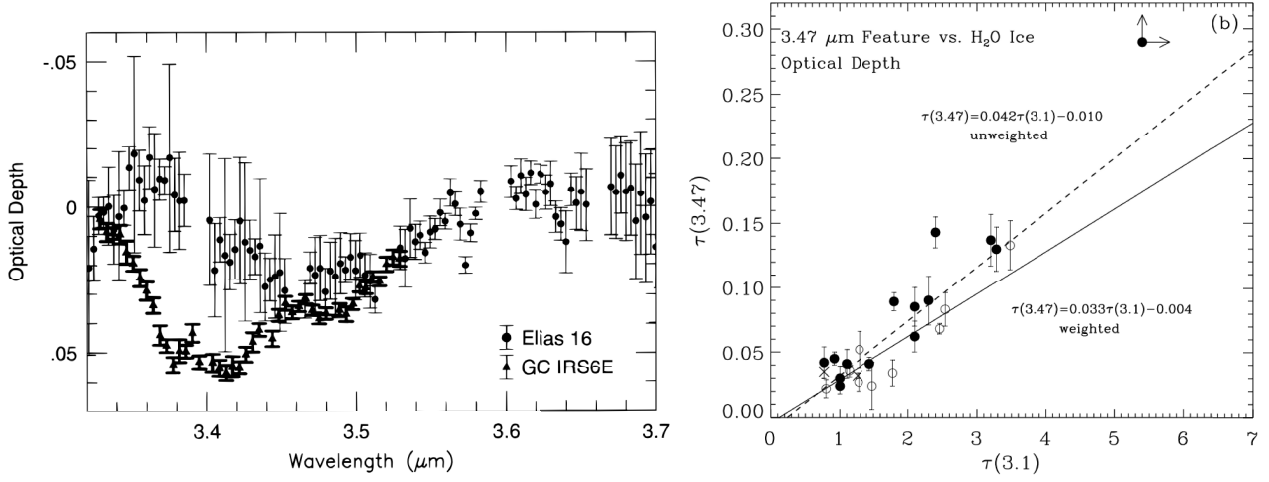


FIGURE 3.5 – **Bande d’absorption à 3.47 μm observée dans les nuages denses.** *A gauche* : Comparaison entre la bande d’absorption à 3.47 μm observée dans le nuage Elias 16 et la bande d’absorption à 3.4 μm observée vers la source IRS6E du centre galactique (figure issue de [Chiar *et al.* 1996]). *A droite* : Corrélation entre les profondeurs optiques des bandes à 3.47 μm et à 3.1 μm (glace d’eau) [Brooke *et al.* 1999].

ans [McKee 1989]). Il est donc nécessaire d’explorer et de comprendre les processus d’évolution de cette composante de la poussière interstellaire. Le rayonnement cosmique et les photons UV sont des sources d’énergie pouvant altérer les carbones amorphes hydrogénés [Mennella *et al.* 2001, Mennella *et al.* 2003]. Le rôle de ces processus dans la disparition des signatures spectrales des poussières carbonées aliphatiques doit donc être exploré et fera l’objet du chapitre 8.

### 3.2.3 Détections extragalactiques

Pendant longtemps, les a-C:H ont été observés uniquement dans des lignes de visée sondant le milieu interstellaire de la Voie Lactée. La bande à 3.4 μm a ensuite été détectée dans de nombreuses autres galaxies [Bridger *et al.* 1994, Wright *et al.* 1996, Imanishi 2000a, Imanishi 2000b, Risaliti *et al.* 2003, Dartois *et al.* 2004a, Mason *et al.* 2004, Imanishi *et al.* 2006, Imanishi *et al.* 2008, Geballe *et al.* 2009, Sajina *et al.* 2009] avec un profil tout à fait semblable aux observations galactiques (Fig. 3.2 d,e). Les bandes associées dans l’infrarouge moyen (pliage des liaisons C-H) ont elles aussi été observées dans ces galaxies [Spoon *et al.* 2004] [Dartois & Muñoz-Caro 2007]. Ces détections extragalactiques démontrent l’omniprésence des a-C:H dans le MIS diffus des galaxies.

Etant donné que l’observation de ces bandes requiert à la fois de grandes quantités de poussières et une source infrarouge lumineuse, les galaxies correspondant le mieux à ces caractéristiques sont des ULIRG (*Ultraluminous InfraRed Galaxies*) où les bandes aliphatiques sont observées grâce à la présence de fortes densités de colonne de poussières obscurcissant

les noyaux actifs de galaxie fortement émetteurs en infrarouge. Ces lignes de visée permettent d'observer de profondes bandes aliphatiques qui sont peu contaminées par de la matière circumstellaire ou résidant dans des régions denses. De plus, le décalage spectral dû à la distance de ces galaxies peut permettre de rendre accessible depuis le sol des fenêtres spectrales qui ne le sont pas dans notre Galaxie. Les observations extragalactiques permettent donc d'apporter plus de contraintes pour comprendre la structure et la distribution des a-C:H interstellaires et démontrent leur ubiquité.

### 3.3 Contraintes observationnelles sur la structure des a-C:H

#### 3.3.1 Rapport CH<sub>2</sub>/CH<sub>3</sub>

[Sandford *et al.* 1991] et [Pendleton *et al.* 1994] ont comparé la bande à 3.4  $\mu\text{m}$  observée vers le centre galactique à celle de spectres d'alcane. Cette comparaison de l'intensité relative des modes d'élongation asymétrique des groupements méthyle et méthylène (à 3.38 et 3.42  $\mu\text{m}$ ) a permis d'estimer un rapport CH<sub>2</sub>/CH<sub>3</sub> égal à 2-2.5 pour les poussières aliphatiques du milieu interstellaire. [Duley *et al.* 2005] ont trouvé des résultats similaires en comparant le profil de la bande à 3.4  $\mu\text{m}$  avec des profils générés grâce à un modèle *Random Covalent Network* (RCN). Ce formalisme permet de modéliser un réseau de carbone hybridés sp<sup>2</sup> et sp<sup>3</sup> qui reproduit bien les propriétés des carbones amorphes hydrogénés [Angus & Jansen 1988, Jones 1990].

La valeur de ce rapport renseigne sur la longueur des chaînes aliphatiques. En effet, la structure des chaînes aliphatiques étant CH<sub>3</sub>(CH<sub>2</sub>)<sub>n</sub>CH<sub>3</sub>, leur allongement se traduit par une augmentation du rapport CH<sub>2</sub>/CH<sub>3</sub>. Cette valeur est susceptible de varier avec les conditions de l'environnement dans lequel se trouvent les poussières.

#### 3.3.2 Contribution des carbones aromatiques

Pour avoir accès à la quantité de carbones aromatiques dans le matériau observé, plusieurs bandes IR spécifiques existent. Notamment, une bande d'absorption à 3.3  $\mu\text{m}$  correspond au mode d'élongation des liaisons C-H attachées à un cycle aromatique, et une bande à 6.2  $\mu\text{m}$  est attribuée aux élongations des liaisons C=C aromatiques (et/ou oléfiniques).

L'observation de ces bandes est restreinte depuis le sol puisque celle à 6.2  $\mu\text{m}$  n'est pas dans une fenêtre atmosphérique, et celle à 3.3  $\mu\text{m}$  coïncide avec une absorption atmosphérique forte. Depuis l'espace, la bande à 6.2  $\mu\text{m}$  devient accessible. Il n'est cependant pas évident d'estimer précisément sa profondeur à partir des observations du centre galactique car il y a de la confusion avec la bande de la glace d'eau à 6  $\mu\text{m}$  des nuages denses en avant-plan [Chiar *et al.* 2000] et/ou avec une contribution de la bande à 6.2  $\mu\text{m}$  d'origine circumstellaire dans certaines directions [Chiar & Tielens 2001] (Fig. 3.2 a). Les observations extragalactiques sont donc plus adaptées à l'estimation du contenu aromatique des a-C:H interstellaires. Grâce



au décalage vers le rouge des galaxies distantes, la détermination de la profondeur de la bande à  $3.3 \mu\text{m}$  depuis le sol devient possible puisque cette bande tombe alors en dehors des absorptions telluriques. Dans certaines galaxies où l'émission par les PAH est importante, la bande à  $3.3 \mu\text{m}$  n'est cependant toujours pas accessible à cause de l'émission AIB à cette longueur d'onde. De plus, la grande zone sondée minimise les contributions locales de milieux denses ou circumstellaires. Il n'y a alors pas ou peu de confusion concernant la profondeur de la bande autour de  $6.2 \mu\text{m}$ .

La force de la bande d'élongation C-H des groupements aromatiques (à  $3.3 \mu\text{m}$  ou  $3050 \text{ cm}^{-1}$ ) est environ 10 fois plus faible [Ristein *et al.* 1998] que celle de l'élongation des C-H des groupements aliphatiques (centrée autour de  $3.4 \mu\text{m}$  ou  $2900 \text{ cm}^{-1}$ ). Cela est dû au fait que, d'une part, les carbones aromatiques sont liés à moins d'atomes d'hydrogène que les carbones aliphatiques, et d'autre part les forces de bandes par liaison C-H sont intrinsèquement différentes dans ces deux types de groupements. Ainsi, pour une quantité comparable de liaisons C-H aromatiques et aliphatiques, les aromatiques seront beaucoup moins visibles par leurs bandes d'absorption IR. Cette bande d'élongation des C-H aromatiques n'est pas détectée en absorption dans le MIS diffus et l'essentiel des observations permettent seulement d'estimer une limite supérieure (e.g. [Chiar *et al.* 2000]). Malgré une observation difficile depuis le sol des longueurs d'onde autour de  $3.3 \mu\text{m}$  soulignée par les auteurs, [Pendleton *et al.* 1994] ont estimé à partir des observations du centre galactique que  $\sim 5\%$  du carbone présent le long de la ligne de visée est sous forme de carbone aromatique lié à des atomes d'hydrogène. Par ailleurs, [Chiar & Tielens 2001] ont montré que l'absorption par des liaisons C=C (aromatique ou oléfinique) observée à  $1600 \text{ cm}^{-1}$  ( $6.2 \mu\text{m}$ ) en direction d'étoiles Wolf-Rayet WC avait une origine circumstellaire et n'était probablement pas (ou très peu) due au MIS diffus sondé le long de la ligne de visée. Cela montre bien que le contenu aromatique des poussières hydrocarbonées du milieu interstellaire diffus est faible.

[Dartois *et al.* 2007] ont estimé une limite supérieure pour la bande à  $3.3 \mu\text{m}$  en direction de la galaxie IRAS 08572+3915. Cette limite correspond à un rapport du nombre d'atomes d'hydrogène liés à des atomes de carbone aromatiques par rapport à ceux reliés à des carbones aliphatiques  $N(\text{H}_{\text{arom}})/N(\text{H}_{\text{aliph}}) < 0.08$ . De plus, dans cette ligne de visée, une faible bande à  $6.0 \mu\text{m}$  (pliage des liaisons O-H) est attendue, donc l'essentiel de la bande à  $6.2 \mu\text{m}$  observée doit être due aux liaisons C=C. Il y a donc peu de carbones aromatiques liés à des atomes d'hydrogène, mais une structure contenant des oléfiniques et quelques cycles aromatiques est tout de même possible.

### 3.3.3 Hétéroatomes

Une absorption autour de  $5.8 \mu\text{m}$  ( $1710 \text{ cm}^{-1}$ ) est due aux groupements carbonyles C=O. Comme pour la bande à  $6.2 \mu\text{m}$  des C=C aromatiques, l'estimation de la contribution des groupements carbonyles est limitée par la confusion avec la glace d'eau présente dans les nuages denses le long des lignes de visée vers le centre galactique. Cette liaison possède cependant une force d'oscillateur intrinsèque importante. La faible bande observée à ces longueurs d'onde

dans le spectre du MIS diffus impose donc que les a-C:H interstellaires ne contiennent qu'une très faible fraction d'oxygène. L'accès à l'IR moyen rendu possible par les satellites comme ISO a donc permis d'imposer une limite supérieure (au plus quelques % par rapport au carbone) [Pendleton & Allamandola 2002, Dartois *et al.* 2007]. Cette limite a donné la possibilité d'exclure plusieurs des nombreux matériaux proposés comme analogues reproduisant la bande interstellaire à 3.4  $\mu\text{m}$  [Pendleton & Allamandola 2002].

L'absence d'absorption détectable aux fréquences associées aux liaisons contenant de l'azote comme les nitriles vers 2200-2000  $\text{cm}^{-1}$  suggère que cet élément ne soit pas présent en quantité importante dans les poussières carbonées du MIS diffus [Pendleton & Allamandola 2002], mais la quantité d'autres groupements contenant des atomes d'azote dans le matériau est assez peu contrainte.

### 3.3.4 Contenu en hydrogène

Il est possible d'évaluer la fraction minimum d'hydrogène contenue dans le matériau porteur de la bande interstellaire à 3.4  $\mu\text{m}$  pour un rapport  $\text{CH}_2/\text{CH}_3$  donné, et c'est ce qu'ont fait [Dartois *et al.* 2007] dans le cas particulier de la source extragalactique IRAS 08572+3915. Pour  $\text{CH}_2/\text{CH}_3 = 2$ , le rapport  $\text{H}(\text{sp}^3)/\text{C}_\text{H}(\text{sp}^3)$  vaut 2.33 ( $\text{C}_\text{H}$  désigne les atomes de carbone liés à de l'hydrogène et C correspond à l'ensemble des atomes de carbones, liés ou pas à de l'hydrogène). Un matériau formé d'atomes d'hydrogène, de carbone  $\text{sp}^3$  et de carbone  $\text{sp}^2$  est considéré (il existe très peu de carbone hybridé  $\text{sp}^1$  dans ces matériaux interstellaires). La fraction atomique de l'élément  $i$  dans le matériau est notée  $x(i)$ . On a alors :

$$x(\text{H}) + x(\text{C sp}^3) + x(\text{C sp}^2) = 1 \quad (3.1)$$

La fraction d'atomes d'hydrogène  $x(\text{H})$  minimum dans le matériau est égale à la fraction d'atomes d'hydrogène liés aux carbones  $\text{sp}^3$  du matériau (cas où aucun atome d'hydrogène n'est lié aux carbones  $\text{sp}^2$ ) :

$$x(\text{H}) \geq x(\text{H sp}^3) = 2.33 x(\text{C}_\text{H sp}^3) \quad (3.2)$$

A partir de la profonde bande à 3.4  $\mu\text{m}$  observée vers la source extragalactique IRAS 08572+3915, [Dartois *et al.* 2007] ont estimé qu'au minimum 10% du carbone total sur cette ligne de visée est impliqué dans des liaisons C-H où le carbone est hybridé  $\text{sp}^3$ . Cela implique une limite inférieure pour la fraction  $x(\text{C}_\text{H sp}^3)$  de carbone  $\text{sp}^3$  lié à de l'hydrogène dans le matériau. Cette limite correspond au cas où tout le carbone cosmique se trouve dans le matériau. La fraction minimum de carbone  $\text{sp}^3$  lié à de l'hydrogène correspond alors à :  $x(\text{C}_\text{H sp}^3)/(x(\text{C sp}^3)+x(\text{C sp}^2)) = 0.10$ . L'équation 3.1 devient  $2.33 x(\text{C}_\text{H sp}^3) + x(\text{C}_\text{H sp}^3)/0.10 = 1$  et  $x(\text{C}_\text{H sp}^3) = \frac{1}{1/0.10+2.33}$ . On obtient alors que :

$$x(\text{H}) \geq \frac{2.33}{1/0.10 + 2.33} = 0.19 \quad (3.3)$$



Ainsi, les a-C:H porteurs de la bande interstellaire à  $3.4 \mu\text{m}$ , dont le rapport  $\text{CH}_2/\text{CH}_3$  est environ de 2-2.5 et dont les liaisons C-H aliphatiques contiennent au moins 10% du carbone cosmique, sont constitués d'au moins 19% d'hydrogène (i.e.  $\text{H}/\text{C} > 0.23$ ).

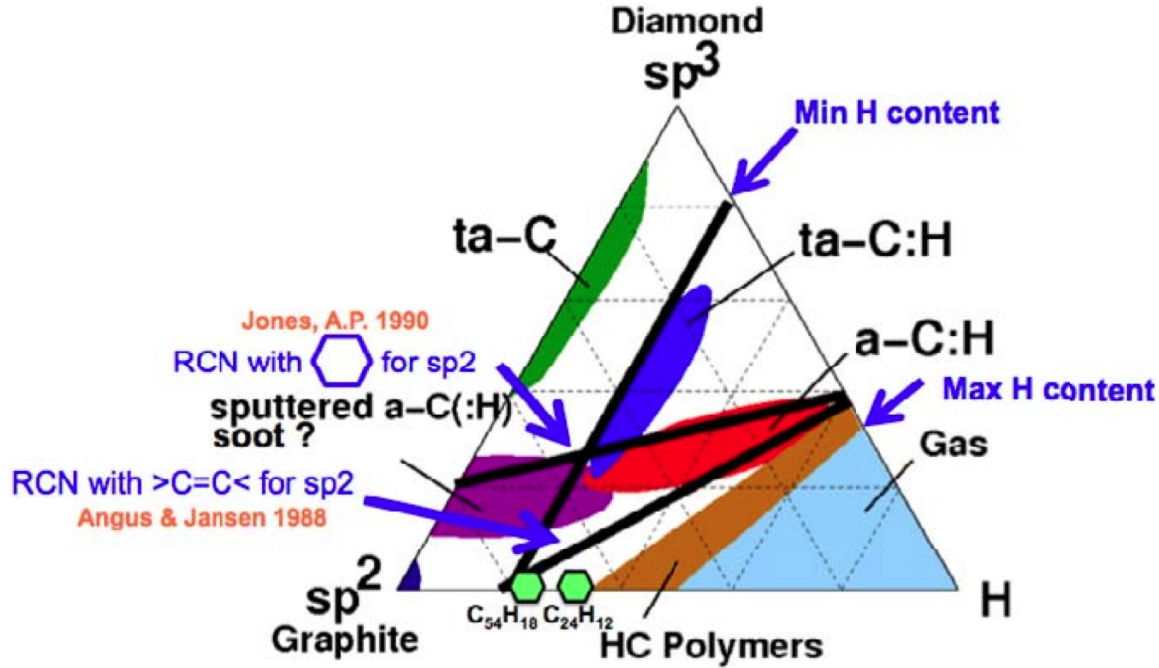


FIGURE 3.6 – Diagramme de phase ternaire (H, C  $\text{sp}^2$ , C  $\text{sp}^3$ ) pour les carbones amorphes. Diagramme issu de [Dartois 2011]. Voir le texte pour plus de détails.

La répartition des atomes d'un matériau hydrocarboné entre les atomes d'hydrogène, les atomes de carbone hybridés  $\text{sp}^3$  et les atomes de carbone hybridés  $\text{sp}^2$  peut être représentée dans un diagramme ternaire représenté sur la Figure 3.6. La contrainte du contenu minimum en hydrogène discutée ci-dessus est indiquée par une ligne noire. La zone bleue claire correspond aux concentrations trop fortes en hydrogène pour qu'un solide puisse exister. Différentes zones colorées correspondent à divers matériaux carbonés produits expérimentalement [Ferrari & Robertson 2000] (ta-C:H représente les carbones amorphes hydrogénés tétraédriques). Les deux autres lignes noires correspondent à deux structures limites, calculées par *random covalent network* (RCN), où les liaisons C=C sont soit purement éthyléniques (i.e. oléfiniques) [Angus & Jansen 1988], soit purement aromatiques [Jones 1990]. Les structures compatibles avec les modèles RCN et les contraintes astrophysiques déterminées à partir des observations correspondent tout à fait à la zone des carbones amorphes hydrogénés, représentée en rouge sur la figure.

A partir d'un raisonnement sur l'extinction visuelle produite par des silicates et des carbones amorphes hydrogénés, [Adamson *et al.* 1990] ont estimé qu'en direction du centre galactique, les a-C:H devaient avoir un fort degré d'hydrogénation, avec  $\text{H}/\text{C} \geq 0.8$  (i.e.  $x(\text{H}) \geq 40\%$ ).

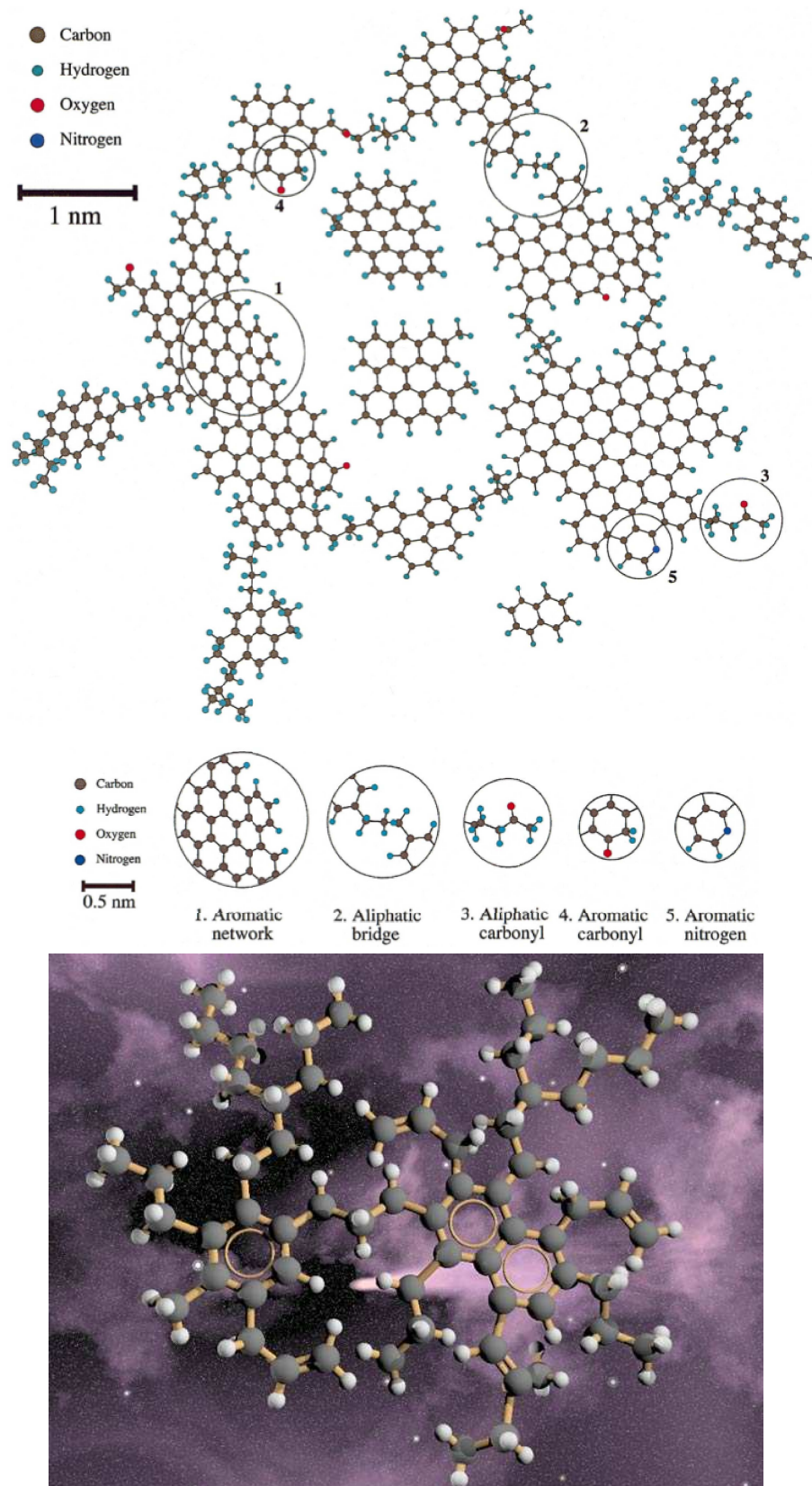


FIGURE 3.7 – Unités structurales de base proposées pour décrire les a-C:H interstellaires. Schémas issus de [Pendleton & Allamandola 2002] (haut) et [Dartois *et al.* 2005] (bas).

### 3.3.5 Structures proposées des a-C:H interstellaires

Après avoir comparé les spectres observés dans le milieu interstellaire diffus avec ceux des nombreux analogues proposés, [Pendleton & Allamandola 2002] ont proposé une structure caractéristique des poussières interstellaires carbonées observées au travers des bandes à 3.4, 6.85 et 7.25  $\mu\text{m}$ . Cette structure, présentée en haut de la figure 3.7, est majoritairement formée par des cycles aromatiques reliés entre eux par des ponts aliphatiques, avec un faible contenu en hétéroatomes. Elle vérifie un rapport  $\text{CH}_2/\text{CH}_3$  de 2.5,  $\text{H}/\text{C} \sim 0.4$ , et les carbones aromatiques représentent environ 70 % du carbone total dans la structure. Le rapport  $N(\text{H}_{\text{arom}})/N(\text{H}_{\text{aliph}})$  vaut plus de 0.9, bien au delà de la limite supérieure de 0.08 fixée par les observations de la bande à 3.3  $\mu\text{m}$  en direction de la galaxie IRAS 08572+3915 [Dartois *et al.* 2007]. Il semble donc que cette structure proposée par [Pendleton & Allamandola 2002] soit trop aromatique pour correspondre aux observations.

En utilisant des simulations de réseaux neuronaux pour prédire les spectres infrarouges associées à une structure, [Dartois *et al.* 2004b] ont montré qu'un squelette carboné beaucoup moins aromatique, avec une importance plus grande des chaînes aliphatiques, est plus adapté pour reproduire les spectres interstellaires (Fig. 3.8). La structure présentée en bas de la figure 3.7, moins aromatique et plus hydrogénée que celle décrite par [Pendleton & Allamandola 2002], a donc été proposée comme unité structurale typique des a-C:H interstellaires.

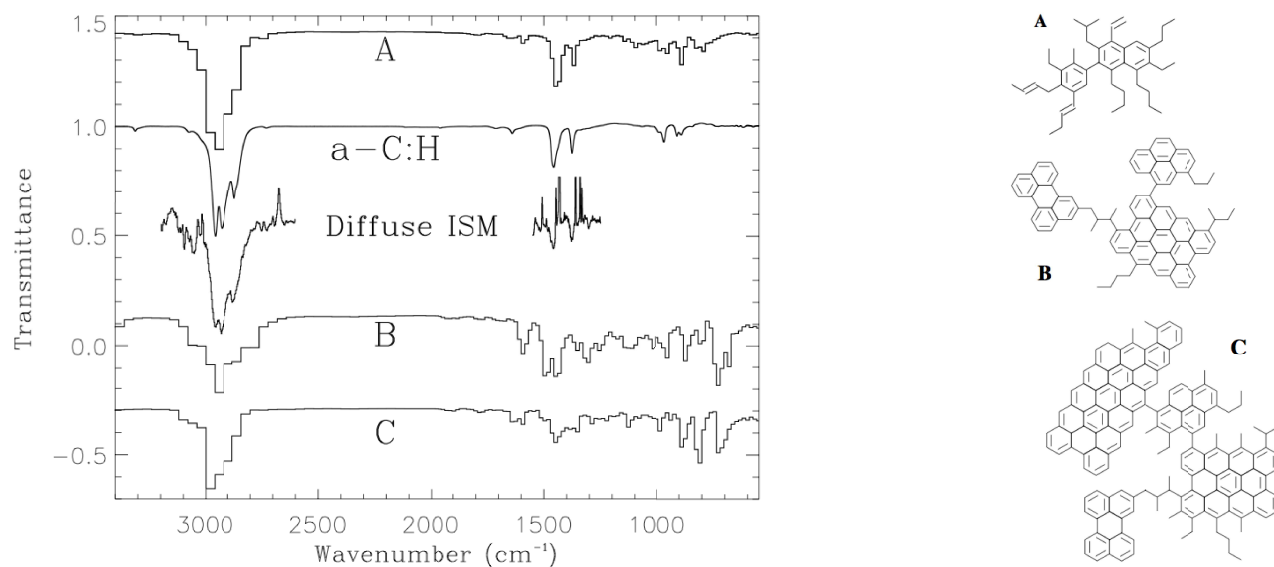


FIGURE 3.8 – **Simulations de spectres IR de différentes structures d'a-C:H comparées au spectre du MIS diffus.** Ces simulations sont basées sur des réseaux neuronaux. Trois structures sont considérées et représentées à droite : A, B et C de la moins aromatique à la plus aromatique. Un spectre d'a-C:H produit en laboratoire par photolyse d'hydrocarbures à basse température est aussi représenté. Cette figure est issue de [Dartois *et al.* 2005].

## 3.4 Sous quelle forme ?

### 3.4.1 Lien avec les silicates

Nous avons vu à la section 3.2 le comportement de la profondeur optique de la bande à  $3.4\ \mu\text{m}$  avec l'extinction visuelle dans la Galaxie, c'est-à-dire une augmentation linéaire dans le milieu interstellaire local et une plus forte profondeur optique en direction du centre galactique. La bande d'absorption à  $9.7\ \mu\text{m}$  des silicates suit le même comportement, comme le montre la figure 3.3 (carrés, multipliés par un facteur  $1/18$  par rapport à la bande à  $3.4\ \mu\text{m}$ ). La variation similaire pour ces deux bandes avec l'extinction semble montrer que les silicates et les a-C:H interstellaires soient couplés [Sandford *et al.* 1995]. Il a même été suggéré que ces poussières pouvaient être sous forme de noyaux de silicates couverts par des manteaux organiques [Greenberg *et al.* 1995, Li & Greenberg 2002]. Le noyau actif NGC 1068, observé par [Geballe *et al.* 2009] et partiellement résolu spatialement, présente les bandes d'absorption à  $3.4\ \mu\text{m}$  et  $9.7\ \mu\text{m}$  et les variations spatiales de leur profondeur optique semblent corrélées. Cela suggère que les poussières silicatées et les a-C:H interstellaires soient couplés ou bien mélangés dans le milieu interstellaire.

### 3.4.2 Mesure de polarisation

Si les poussières responsables de la bande à  $3.4\ \mu\text{m}$  étaient associées aux silicates sous forme de grains composites ou formés par un noyau de silicates recouvert par un manteau de matériaux organiques [Greenberg *et al.* 1995, Li & Greenberg 2002], on s'attendrait à trouver une polarisation comparable pour les bandes à  $3.4$  et  $9.7\ \mu\text{m}$  [Adamson *et al.* 1999, Li & Greenberg 2002]. Cependant, les observations ne semblent pas aller en ce sens : la bande des silicates est polarisée (cf. §2.3.3), alors qu'aucune polarisation n'a été détectée par les mesures de spectropolarimétrie de la bande des a-C:H [Adamson *et al.* 1999, Chiar *et al.* 2006, Mason *et al.* 2007]. Cela suggérerait donc que les silicates et les a-C:H constituent deux populations distinctes, et que les a-C:H seraient plutôt sous forme de grains sphériques ou non alignés avec le champ magnétique. Cependant, la réponse en polarisation des a-C:H étant très dépendante de leur forme et de leur degré d'hydrogénation, des contraintes observationnelles plus fortes (notamment un meilleur rapport signal sur bruit) sont requises.

La forme sous laquelle se présentent les a-C:H interstellaires n'est donc pas clairement établie.

## 3.5 Part importante de la poussière interstellaire

Etant données les différentes formes qu'adopte le carbone interstellaire, il est important de savoir quelle fraction se trouve sous forme de carbones amorphes hydrogénés. L'estimation de la fraction de carbone contenu dans les a-C:H interstellaires dépend des hypothèses prises concernant les forces d'oscillateur des modes de vibration des liaisons C-H, dépendants du



matériau de référence choisi, la quantité totale de carbone présente le long de la ligne de visée, et le degré d'hydrogénation des a-C:H puisque seuls les atomes de carbone liés à de l'hydrogène sont visibles au travers des bandes d'absorption à 3.4, 6.85 et 7.25  $\mu\text{m}$ .

Pour cette estimation, il faut tout d'abord calculer  $N_C$ , la quantité totale (en phases gaz et solide) de carbone présente le long d'une ligne de visée donnée. L'extinction visuelle  $A_V$  associée à la direction observée permet d'estimer la densité de colonne de l'hydrogène  $N_H$  grâce à la relation standard  $N_H/A_V = 1.9 \times 10^{21} \text{ cm}^{-2}/\text{mag}$  [Bohlin *et al.* 1978]. La quantité  $N_C$  est ensuite calculée à partir de l'abondance cosmique du carbone par rapport à l'hydrogène ( $C/H \sim 3.6 \times 10^{-4}$ , cf. §2.1). La quantité de carbone retenue dans les poussières hydrocarbonée peut être estimée à partir de la profondeur des bandes de vibration des liaisons C-H aliphatiques. C'est donc la quantité d'atomes de carbone aliphatique liés à des atomes d'hydrogène qui sera ainsi déterminée, et non la fraction totale de carbone de ces poussières. Les modes d'élongation asymétrique à 3.38 et 3.42  $\mu\text{m}$  sont utilisés car ce sont ceux où les modes des groupements méthyle et méthylène sont bien visibles et les mieux séparés. Les quantités de ces groupements  $N_{CH_2}$  et  $N_{CH_3}$  sont déduites des profondeurs optiques intégrées grâce aux valeurs  $A$  de l'absorbance intégrée (en  $\text{cm}/\text{molécule}$ ) :  $N = \frac{\int \tau d\nu}{A}$ . Les valeurs de  $A$  sont le plus souvent déduites de celles d'hydrocarbures aliphatiques saturés individuels [D'Hendecourt & Allamandola 1986, Dartois *et al.* 2004a], mais l'absorbance d'un même groupement varie avec le matériau étudié. Notamment, la présence de groupes électro-négatifs (cycles aromatiques, liaisons O-H, ...) près des liaisons C-H aliphatiques peut entraîner une baisse de l'absorption de la bande à 3.4  $\mu\text{m}$ . Le rapport  $(N_{CH_2} + N_{CH_3})/N_C$  donne alors la fraction du carbone cosmique contenu dans les liaisons C-H aliphatiques des a-C:H interstellaires.

Par cette méthode, [Sandford *et al.* 1991] et [Pendleton *et al.* 1994] ont estimé que le carbone  $\text{sp}^3$  lié à de l'hydrogène de ces poussières représente entre 2.5 et 35% du carbone cosmique (la différence entre ces limites haute et basse est due à différentes valeurs de  $A$  adoptées, la limite inférieure correspondant aux valeurs de  $A$  d'alcane purs). [Duley *et al.* 1998] ont expérimentalement mesuré les valeurs de l'absorbance  $A$  de chaque groupement aliphatique pour des carbones amorphes hydrogénés. Ces travaux montrent que les valeurs intrinsèques de  $A$  des modes asymétriques de  $\text{CH}_2$  et  $\text{CH}_3$  sont beaucoup plus faibles (jusqu'à un ordre de grandeur) pour les carbones amorphes hydrogénés que pour les hydrocarbures aliphatiques purs. Cela semble indiquer que la fraction de carbone contenu dans ces poussières interstellaires doit être plus proche de la limite haute (35%) que de la limite basse (2.5%) donnée par [Sandford *et al.* 1991]. [Duley *et al.* 1998] ont estimé que les poussières aliphatiques du milieu diffus local et vers le centre galactique contiennent respectivement  $5.7 \times 10^{-5}$  et  $9.9 \times 10^{-5}$  atomes de carbone  $\text{sp}^3$  hydrogéné par atome d'hydrogène le long de la ligne de visée. En prenant l'abondance cosmique du carbone égale à  $3.6 \times 10^{-4}$  [Sofia & Meyer 2001], cela représente respectivement 16 et 28% du carbone disponible.

[Furton *et al.* 1999] ont évalué la quantité de carbone nécessaire pour reproduire la force de la bande à 3.4  $\mu\text{m}$  observée dans le milieu interstellaire diffus, en discutant l'influence du rapport H/C des a-C:H considérés. En effet, les forces de bande des élongations C-H augmentent avec le rapport H/C du matériau [Jacob & Unger 1996] (d'un facteur 4 lorsque H/C varie de 0.3 à 1).

[Furton *et al.* 1999] ont estimé que le carbone des a-C:H représente 20 à 80 ppm de l'hydrogène si la valeur du rapport H/C se situe entre 0.9 et 0.5, respectivement (c'est-à-dire de 5 à 25 % du carbone cosmique en prenant l'abondance cosmique du carbone de [Sofia & Meyer 2001]).

[Dartois *et al.* 2007] ont observé la bande à 3.4  $\mu\text{m}$  dans la galaxie IRAS 08572+3915 et ont évalué la quantité de carbone nécessaire pour générer cette absorption extragalactique. Ils ont estimé que, le long de cette ligne de visée, environ 15% (entre 10 et 30 %) du carbone cosmique est impliqué dans des liaisons C-H aliphatiques. Cette fraction ne représente que la partie hydrogénée et hybridée  $\text{sp}^3$  de la poussière carbonée et implique donc que les carbones amorphes hydrogénés représentent une composante majeure de la poussière interstellaire.

## 3.6 Formation et évolution

Il semblerait que la formation des a-C:H observés dans le MIS diffus ait lieu à la fois dans les enveloppes d'étoiles carbonées et dans le milieu interstellaire diffus. En effet, des poussières carbonées peuvent d'abord être formées dans les environnements circumstellaires riches en carbone, puis ces matériaux sont progressivement hydrogénés dans le MIS diffus au contact d'hydrogène atomique. Ce scénario semble être conforté par les expériences de [Mennella *et al.* 1999, Mennella *et al.* 2002, Mennella 2006] qui montrent que des grains carbonés non hydrogénés font apparaître les bandes de vibration des C-H aliphatiques lorsqu'ils sont exposés à un flux d'atomes d'hydrogène, et que ce processus pourrait être assez rapide dans les conditions du MIS diffus. Une bande d'absorption autour de 3.4  $\mu\text{m}$  a été observée par [Lequeux & Jourdain de Muizon 1990] et [Chiar *et al.* 1998] dans le spectre de la nébuleuse protoplanétaire CRL 618. Cette bande, observée dans l'enveloppe d'une étoile évoluée, possède un profil très similaire à celui observé dans le milieu interstellaire diffus. Cette observation a parfois été interprétée comme une preuve de la formation d'a-C:H dans les enveloppes circumstellaires, il est en fait probable que la bande observée vers CRL 618 soit due à la présence de petits hydrocarbures en phase gazeuse [Cernicharo *et al.* 2001b, Cernicharo *et al.* 2001a].

Les carbones amorphes hydrogénés du milieu interstellaire sont soumis à différents processus énergétiques qui peuvent les faire évoluer. L'étude de ces mécanismes d'évolution, notamment en laboratoire grâce à des analogues de cette composante de la poussière, devient alors essentielle. Plusieurs processus énergétiques interstellaires ont pour effet de détruire les poussières hydrocarbonées aliphatiques et leurs signatures spectrales, par exemple en déshydrogénant ces matériaux. Ainsi, l'exposition au rayonnement UV [Mennella *et al.* 2001], aux rayons cosmiques [Mennella *et al.* 2003], à de fortes températures [Duley 1996, Scott & Duley 1996, Dartois *et al.* 2005] font évoluer les carbones amorphes hydrogénés en modifiant la structure du matériau, par exemple en réduisant leur contenu en hydrogène, en augmentant les rapports  $\text{CH}_2/\text{CH}_3$  et  $\text{sp}^2/\text{sp}^3$ , ... L'évolution de ces matériaux avec les conditions de l'environnement dans lequel ils se trouvent doit être reflétée par leur spectre d'absorption dans l'infrarouge. Les processus énergétiques interstellaires doivent donc permettre d'expliquer la disparition des bandes d'absorption des C-H aliphatiques dans les nuages denses. Cette altération peut

mener dans certaines conditions à la formation d'autres formes de matière carbonée. Ainsi, [Scott & Duley 1996]) et [Duley 2000] discutent les liens possibles entre a-C:H et PAH interstellaires.

### 3.7 Analogues de laboratoire

La bande à  $3.4\ \mu\text{m}$  a très rapidement été identifiée comme celle des modes d'élongation des liaisons C-H d'un matériau organique contenant des groupements aliphatiques (-CH<sub>2</sub>- et -CH<sub>3</sub>). A la suite de la découverte de cette signature et au cours des 30 dernières années, différentes équipes ont tenté de préciser l'origine de cette bande interstellaire. Comme [Pendleton *et al.* 1994] l'ont souligné, de nombreux matériaux avec d'abondants groupements -CH<sub>2</sub>- et -CH<sub>3</sub> ont un spectre IR ressemblant à ceux observés dans le MIS diffus. De très nombreux matériaux ont ainsi été proposés comme analogues de cette composante interstellaire. Tous ces candidats étaient au début proposés sur la base d'un accord avec la bande à  $3.4\ \mu\text{m}$ . Comme nous l'avons vu dans ce chapitre, des contraintes plus fortes sur ce matériau interstellaire ont ensuite été apportées par l'infrarouge moyen rendu accessible par les télescopes spatiaux. Plusieurs analogues ont ainsi été écartés. Aujourd'hui, il existe un consensus concernant le fait que ce sont des carbones amorphes hydrogénés qui sont responsables des bandes d'absorption à  $3.4$ ,  $6.85$  et  $7.25\ \mu\text{m}$  largement observées dans le milieu interstellaire diffus de la Voie Lactée et de galaxies distantes.

Les carbones amorphes hydrogénés décrivent cependant une large gamme de matériaux, différant par leur degré d'hydrogénation, leurs rapports CH<sub>2</sub>/CH<sub>3</sub>, sp<sup>2</sup>/sp<sup>3</sup>, etc. Différents analogues de laboratoire compatibles avec les observations interstellaires, produits par différentes techniques et portant différents noms, reproduisent donc plus ou moins bien les spectres du MIS diffus. Les différents matériaux qui ont été ou sont proposés comme analogues de cette composante interstellaire sont revus dans cette section (voir aussi [Pendleton *et al.* 1994, Pendleton & Allamandola 2002]).

#### Bactéries *E. coli*

Parmi les premiers candidats proposés pour expliquer la bande interstellaire à  $3.4\ \mu\text{m}$  alors fraîchement découverte, même le spectre de bactéries *E. coli* a été comparé à cette signature interstellaire [Hoyle *et al.* 1982]. Cela montre bien qu'avec les données disponibles à l'époque, de qualité assez faible et sans les contributions à plus grandes longueurs d'onde, une grande variété de matériaux contenant des groupements aliphatiques -CH<sub>2</sub>- et -CH<sub>3</sub> pouvait reproduire la bande observée vers le centre galactique. Comme l'ont montré [Pendleton & Allamandola 2002], le spectre de cette matière organique complexe d'origine biologique n'est en fait pas compatible avec les observations, que ce soit autour de  $3.4\ \mu\text{m}$  ou aux plus grandes longueurs d'onde.

#### Matériaux météoritiques

La grande similarité entre la bande interstellaire centrée à  $3.4\ \mu\text{m}$  et celle présente dans la ma-

tière organique insoluble (IOM pour *Insoluble Organic Matter*) des météorites carbonées Murchison et Orgueil fut aussi remarquée [Knacke 1977, Ehrenfreund *et al.* 1991, Pendleton *et al.* 1994]. Cependant, les fortes absorptions à basses fréquences et autour de  $3.3\ \mu\text{m}$  de ces extraits météoritiques [Wdowiak *et al.* 1988, Pendleton & Allamandola 2002], non observés dans les spectres du MIS diffus, impliquent une structure différente (beaucoup plus aromatique et avec une fraction d'oxygène importante) de celle de la matière aliphatique interstellaire [Dartois *et al.* 2004a]. Cela montre bien l'importance de comparer l'ensemble des bandes présentes dans les spectres IR, et de ne pas se contenter de l'accord spectral sur une gamme réduite de longueurs d'onde. Un lien entre ces deux matériaux extraterrestres n'est pas impossible, mais l'essentiel de l'IOM des météorites carbonées est une phase différente des porteurs de la bande interstellaire à  $3.4\ \mu\text{m}$ .

### Résidus produits à partir de glaces contenant majoritairement de l'eau

Une large gamme de matériaux organiques peut être produite à partir de glaces de diverses molécules ( $\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{CH}_3\text{OH}$ ,  $\text{CO}$ ,  $\text{NH}_3$ , ...) en diverses proportions. L'irradiation de ces glaces, constituées majoritairement d'eau et représentant celles présentes dans les nuages interstellaires denses, par des photons UV [Allamandola *et al.* 1988, Bernstein *et al.* 1995, Greenberg *et al.* 1995] ou par des ions énergétiques [Moore & Donn 1982, Strazzulla *et al.* 1995] produit un résidu organique stable à température ambiante.

Ces analogues ont été proposés pour correspondre avec la bande interstellaire à  $3.4\ \mu\text{m}$ . Ils ne sont cependant pas compatibles avec les observations du MIS diffus car les bandes d'absorption de ces résidus sont trop fortes dans l'IR moyen, notamment à cause d'un contenu important en oxygène. De plus, le profil de la bande à  $3.4\ \mu\text{m}$  interstellaire n'est pas bien reproduit par les résidus formés à partir de glaces contenant majoritairement de l'eau car la présence importante de groupements électrophyles adjacents aux groupements méthyle et méthylène perturbe le profil de la bande à  $3.4\ \mu\text{m}$ .

Les analogues présentés ci-dessus ne sont donc pas compatibles avec l'ensemble du spectre de la composante aliphatique de la poussière hydrocarbonée. Les matériaux présentés ci-dessous font partie d'une autre classe d'analogues. Même s'ils sont différents les uns des autres, ils peuvent tous être considérés comme des carbones amorphes hydrogénés, produits par différentes méthodes expérimentales. Contrairement aux résidus formés à partir de glace contenant majoritairement de l'eau, ces matériaux sont compatibles avec les spectres observés dans le MIS diffus (même si certains reproduisent mieux les bandes des CH aliphatiques et leurs intensités relatives que d'autres).

### Matériaux carbonés formés à partir de carbone solide

Les atomes de carbone de ces analogues sont apportés par un morceau de carbone solide (*carbon rod* en anglais) sous forme de graphite par exemple. Ce carbone solide peut être vaporisé par différentes méthodes : [Schnaiter *et al.* 1998] font chauffer un barreau de carbone jusque sa température de sublimation, tandis que [Mennella *et al.* 1999, Mennella *et al.* 2003]



et [Duley 1994, Scott & Duley 1996, Scott 1997] obtiennent une vapeur de carbone par ablation laser ou en formant un arc électrique sur des électrodes de carbone. Pour obtenir un matériau hydrogéné, ces expériences sont menées sous une atmosphère contenant de l'hydrogène, ou bien les solides formés sont ensuite exposés à un flux d'atomes d'hydrogène.

### Matériaux carbonés formés par plasma

Un plasma formé à partir de gaz d'hydrocarbures peut permettre de condenser des solides constitués d'atomes de carbone et d'hydrogène. Plusieurs équipes utilisent ce processus pour produire des analogues des poussières carbonées aliphatiques. Le plasma est généré par une décharge électrique [Lee & Wdowiak 1993, Furton *et al.* 1999] ou par une décharge micro-onde [Sakata *et al.* 1992, Wada *et al.* 2009]. Les matériaux synthétisés par [Sakata *et al.* 1992] et [Wada *et al.* 2009] sont appelés par les auteurs QCC pour *Quenched Carbonaceous Condensate*. La plupart de ces analogues sont obtenus à partir de méthane mais d'autres gaz peuvent être utilisés comme précurseurs, comme par exemple les molécules aromatiques de naphthalène ( $C_{10}H_8$ ) utilisées par [Lee & Wdowiak 1993].

Cette méthode de production est celle que j'ai utilisée au cours de cette thèse pour produire des a-C:H analogues des poussières hydrocarbonées aliphatiques [Godard & Dartois 2010]. Cette technique expérimentale sera donc discutée au chapitre 5.

### Photoproduction de matériaux carbonés à basse température

Des analogues d'a-C:H interstellaires peuvent être synthétisés par déposition lente de précurseurs hydrocarbures à basse température avec une irradiation UV simultanée [Dartois *et al.* 2004b, Dartois *et al.* 2005]. Une fois l'irradiation/co-déposition terminée, l'échantillon est remonté à température ambiante, permettant ainsi aux radicaux et molécules éventuellement piégés dans la structure du film de s'évaporer. Le matériau résiduel issu de cette photolyse est un a-C:H dont le spectre ressemble beaucoup à celui observé dans le milieu interstellaire diffus. Les conditions de formation de ces analogues ressemblent à celles du MIS diffus en terme de température et de dureté du rayonnement UV, et simulent la recombinaison de radicaux à basse température.

## Deuxième partie

### Observations de carbones amorphes hydrogénés interstellaires



# Le milieu diffus en direction d'IRAS 18511+0146 : une bande à 3.4 $\mu\text{m}$ particulièrement profonde

---

## Sommaire

<b>4.1</b>	<b>Introduction</b>	<b>68</b>
<b>4.2</b>	<b>Observations et réduction des données</b>	<b>68</b>
<b>4.3</b>	<b>Résultats</b>	<b>71</b>
4.3.1	Spectres observés : contributions des MIS diffus et denses	71
4.3.2	La bande d'absorption à 3.47 $\mu\text{m}$ : la contribution des nuages denses	72
<b>4.4</b>	<b>Distance et extinction vers IRAS 18511+0146</b>	<b>76</b>
4.4.1	Distance déduite de la rotation galactique	76
4.4.2	Distance et extinction déduites de diagrammes couleur-couleur	78
4.4.3	Autres arguments	80
<b>4.5</b>	<b>Discussion</b>	<b>82</b>
<b>4.6</b>	<b>Conclusion</b>	<b>85</b>

---

Nous avons vu au chapitre précédent la contribution des carbones amorphes hydrogénés parmi les poussières interstellaires. Ces matériaux présents dans le MIS diffus sont notamment tracés au travers de la bande d'absorption observée à 3.4  $\mu\text{m}$ . La profondeur optique de cette signature le long des différentes lignes de visée sondant le milieu interstellaire local semble corrélée à l'extinction visuelle produite par l'ensemble des poussières (cf. §3.2.1). Cependant, les observations en direction du centre galactique, où une profonde bande à 3.4  $\mu\text{m}$  est observée, suggèrent une distribution non homogène des a-C:H dans la Galaxie.

Dans ce chapitre, je m'intéresserai à cette problématique de la distribution galactique des a-C:H, au travers de l'observation de la bande à 3.4  $\mu\text{m}$  le long de la ligne de visée particulière vers IRAS 18511+0146. Ces travaux ont fait l'objet d'un article soumis dans le journal *Astronomy & Astrophysics* en mai 2011 [Godard *et al.* 2011b].

## 4.1 Introduction

Une intense bande d'absorption à 3.4  $\mu\text{m}$  a été détectée vers l'étoile en formation IRAS 18511+0146 par [Ishii *et al.* 1998]. [Ishii *et al.* 2002] ont ensuite obtenu un spectre de meilleure résolution ( $R = \lambda/\Delta\lambda \sim 1400$ , alors que pour le spectre obtenu par [Ishii *et al.* 1998] la résolution spectrale était  $R \sim 250$ ) de cette ligne de visée située à  $34^\circ$  du centre galactique et proche du plan du disque galactique. La profondeur optique de la bande à 3.4  $\mu\text{m}$  dans cette direction est l'une des plus fortes détectées dans la Voie Lactée en dehors du centre galactique ([Ishii *et al.* 2002] obtiennent  $\tau \sim 0.8 - 0.9$  en direction IRAS 18511).

La bande d'absorption à 3.4  $\mu\text{m}$  est située sur l'aile d'une bande à 3.1  $\mu\text{m}$  attribuée à la glace d'eau. Comme pour le centre galactique, ces deux signatures sont observées vers la source IRAS 18511+0146, mais trouvent leur origine dans des régions différentes le long de la ligne de visée. La bande de la glace d'eau provient du nuage moléculaire dans lequel est enfouie la proto-étoile IRAS 18511+0146. La bande à 3.4  $\mu\text{m}$  est associée aux carbones amorphes hydrogénés présents dans le milieu interstellaire diffus en avant-plan de la source IRAS 18511+0146. L'extinction visuelle  $A_V$  due au MIS diffus le long de la ligne de visée est estimée (à partir de la distance de la source et de l'extinction interstellaire moyenne) à environ 7 mag. La profondeur optique observée à 3.4  $\mu\text{m}$  apparaît alors anormalement élevée pour cette extinction, environ trois fois plus forte que la profondeur optique prédite par la corrélation linéaire entre  $\tau$  et  $A_V$  observée auparavant dans le MIS local ( $A_V/\tau_{3.4} \approx 250$ , [Pendleton *et al.* 1994]). Il semble donc essentiel d'explorer plus en détails la structure du milieu interstellaire diffus sondé par cette ligne de visée.

Grâce à des observations multi-longueurs d'onde de cette source et son environnement proche, [Vig *et al.* 2007] ont montré que cette source est associée à un amas d'étoiles brillantes, dont seulement la plus intense (IRAS 18511+0146) a été observée par [Ishii *et al.* 1998] et [Ishii *et al.* 2002]. Les observations présentées dans ce chapitre utilisent ces sources proches les unes des autres pour sonder différentes lignes de visée du MIS diffus associé à cette direction. Le but est d'une part de confirmer la profondeur de la bande à 3.4  $\mu\text{m}$  observée en direction d'IRAS 18511+0146, et d'autre part de tester une éventuelle variation spatiale des a-C:H entre les différentes lignes de visée proches observées.

Les observations ainsi que la réduction des données seront expliquées dans la section 4.2. Les spectres obtenus seront présentés au §4.3. Nous discuterons la distance et l'extinction vers IRAS 18511+0146 dans la section 4.4 afin d'interpréter la profondeur de la bande à 3.4  $\mu\text{m}$  observée dans la section 4.5. Les conclusions de ce travail seront données dans la section 4.6.

## 4.2 Observations et réduction des données

Les observations ont été effectuées avec l'instrument NIRI (*near-infrared imager/spectrograph*, [Hodapp *et al.* 2003]) du télescope Gemini de l'hémisphère nord situé au sommet du Mauna Kea à Hawaï. Les spectres ont été acquis entre 2.95 et 4.15  $\mu\text{m}$ , en mars et mai 2009, dans

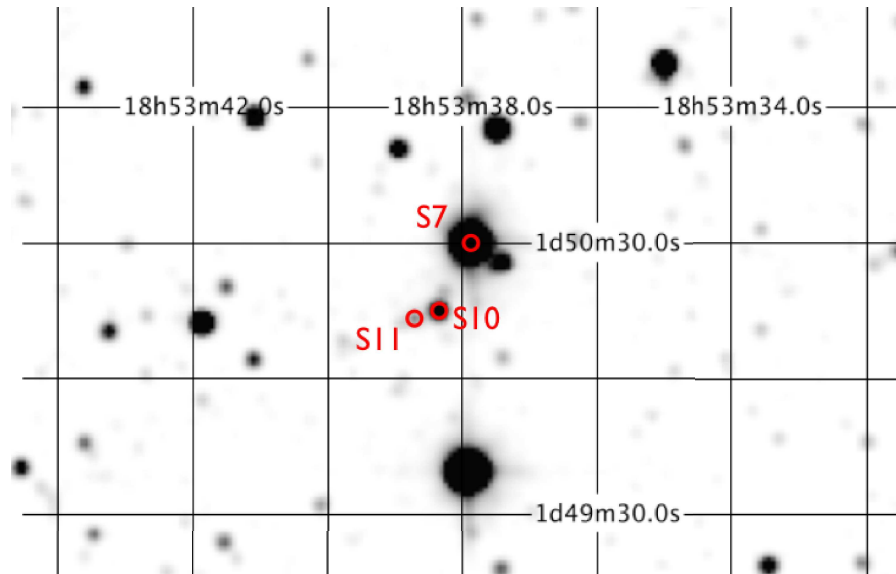


FIGURE 4.1 – Image de la région autour d’IRAS 18511+0146 et des sources observées. Le champ représenté est celui observé dans la bande K, disponible dans le catalogue 2MASS. Les coordonnées indiquées sont les coordonnées J2000.

de bonnes conditions météorologiques, et avec une résolution spectrale de  $R \sim 690$  (fente de  $0.47''$ ). Le tableau 4.1 présente les caractéristiques de ces observations.

Cinq lignes de visée en direction de différentes sources dans la région de la proto-étoile IRAS 18511+0146 (aussi appelée Mol 75 ou RAFGL 5542) ont été observées. Seules trois des sources observées ont un rapport signal/bruit suffisant pour être exploitables dans l’analyse. Ces trois sources sont appelées S7, S10 et S11 d’après la nomenclature adoptée par [Vig *et al.* 2007] (cf. tableau 2 et Fig. 5 de cet article). La source S7 est la plus brillante de l’amas et correspond à IRAS 18511+0146, la source observée par [Ishii *et al.* 1998] et [Ishii *et al.* 2002]. Les informations concernant la position et les magnitudes de ces sources sont données dans le tableau 4.2.

Pour chacune des sources observées (S7, S10, S11 et les étoiles de référence associées), les données se présentent sous forme de tableaux ( $1024 \times 1024$ ) dont l’une des dimensions correspond à la décomposition spectrale, et l’autre est la dimension spatiale du ciel le long de la fente. Chacune de ces “images” est corrigée des mauvais pixels<sup>1</sup> en interpolant sur les pixels voisins, et est divisée par l’image d’un champ plat uniforme de l’instrument (*flat*). La soustraction du fond de ciel (signal dans la fente en dehors de la source) est effectuée grâce à la technique du “*stare-nod*” dans laquelle la position de la source dans la fente est très légèrement décalée (de  $4''$  dans ce cas) entre chaque image, en alternant entre deux directions observées A et B. Le télescope acquiert alors de nombreuses images en suivant une séquence de 4 images successives ABBA. Les paires d’images (A,B) sont assemblées en soustrayant B à A. Le fond de ciel, com-

1. Les positions des mauvais pixels sont déterminées à partir de l’image du champ plat.

Source	Date d'observation	Temps d'exposition (s)	Etoile de référence			
			Nom	Type spectral	$T_{eff}$	$m_L$
S7	12 Mars 2009	240	HIP 89601	F2V	6980 <sup>a</sup>	5.80
S10	19 Mai 2009	2880	HIP 95253	F6V	6340 <sup>b</sup>	5.15
S11	7 Mai 2009	7200	HIP 89601	F2V	6980 <sup>a</sup>	5.80

<sup>a</sup> [Boesgaard & Tripicco 1986]

<sup>b</sup> [Balachandran 1990]

TABLE 4.1 – **Log des observations.** Pour chaque source, la date de l'observation, le temps d'intégration total, et les informations utilisées pour l'étoile de référence (son nom, son type spectral, sa température de corps noir (en Kelvin), et sa magnitude dans la bande L) sont indiqués.

Source	Position (J2000)		Magnitude Palomar			Magnitude Spitzer-IRAC			
	$\alpha$	$\delta$	J	H	$K_S$	3.6 $\mu\text{m}$	4.5 $\mu\text{m}$	5.8 $\mu\text{m}$	8.0 $\mu\text{m}$
	(deg)	(deg)	(mag)	(mag)	(mag)	(mag)	(mag)	(mag)	(mag)
S7	283.4079	1.8418	$13.43 \pm 0.04$	$9.30 \pm 0.03$	$6.61 \pm 0.03$	-	-	-	-
S10	283.4099	1.8375	-	$15.00 \pm 0.03$	$11.11 \pm 0.01$	$7.56 \pm 0.08$	$6.6 \pm 0.2$	$5.65 \pm 0.05$	$4.95 \pm 0.07$
S11	283.4113	1.8370	-	$17.5 \pm 0.2$	$12.77 \pm 0.02$	$7.61 \pm 0.05$	$6.3 \pm 0.2$	$5.11 \pm 0.04$	$4.32 \pm 0.04$

TABLE 4.2 – **Sources observées autour d'IRAS 18511+0146.** Ces informations sont issues de la Table 2 de [Vig et al. 2007]. L'ascension droite  $\alpha$  et la déclinaison  $\delta$  de chaque source sont indiquées. Les magnitudes dans le proche et moyen infrarouge sont obtenues à partir de données du Palomar observatory (bandes J, H et  $K_S$  à 1.25, 1.65 et 2.2  $\mu\text{m}$ ) et de l'instrument IRAC du télescope spatial Spitzer (4 bandes à 3.6, 4.5, 5.8 et 8.0  $\mu\text{m}$ ). Les images IRAC de la source S7 sont saturées.



mun à A et B, est ainsi soustrait. Les paires A-B sont ensuite additionnées afin d’obtenir une image finale, dans laquelle le signal de la source est positif pour la position A et négatif pour la position B (les termes “spectre positif” et “spectre négatif” seront utilisés dans la suite pour désigner cette séparation en deux lots de données due au *nodding*).

L’extraction des spectres contenus dans cette image finale est effectuée en intégrant le signal sur sa dimension spatiale et les spectres positif et négatif sont combinés. La calibration en longueur d’onde est effectuée en utilisant les absorptions telluriques par comparaison avec un spectre de l’atmosphère calibré. La correction de l’extinction atmosphérique est obtenue en divisant le spectre de la source par celui d’une étoile de référence observée la même nuit. L’étoile de référence est observée immédiatement avant ou après la source de l’amas associé à IRAS 18511+0146, et est choisie de façon à ce que les “masses d’air” (variable indiquant la masse d’air ou épaisseur d’atmosphère traversée) soient similaires<sup>2</sup>.

L’étoile de référence, choisie parmi des étoiles de la séquence principale, est aussi utilisée pour effectuer la calibration en flux du spectre obtenu. Le spectre de la source, divisé par celui de l’étoile de référence, est multiplié par un spectre de corps noir de température  $T_{eff}$ , la température effective de l’étoile de référence (cf. Tableau 4.1), et calibré sur son flux dans la bande L. Ces flux sont obtenus à partir de la couleur K-L associée au type spectral de l’étoile de référence [Tokunaga 2000] et de la magnitude dans la bande K mesurée par 2MASS [Cutri *et al.* 2003]. Des raies d’absorption de l’hydrogène atomique n’ont pas été corrigées dans le spectre de l’étoile de référence, donnant lieu à d’apparentes raies d’émission à  $3.04 \mu\text{m}$  (H I Pf $\epsilon$ ),  $3.30 \mu\text{m}$  (H I Pf $\delta$ ),  $3.74 \mu\text{m}$  (H I Pf $\gamma$ ), et  $4.05 \mu\text{m}$  (H I Br $\alpha$ ) (et d’autres raies plus faibles à  $3.69 \mu\text{m}$  (H I Hu18),  $3.82 \mu\text{m}$  (H I Hu16),  $3.91 \mu\text{m}$  (H I Hu15), et  $4.02 \mu\text{m}$  (H I Hu14)).

## 4.3 Résultats

### 4.3.1 Spectres observés : contributions des MIS diffus et denses

Les spectres de S7, S10 et S11, obtenus après la réduction, sont présentés dans les Figures 4.2 et 4.3. L’absorption à  $3.4 \mu\text{m}$  se superpose à l’aile de la large bande d’absorption de la glace d’eau à  $3.1 \mu\text{m}$ . Un continuum local pour la bande à  $3.4 \mu\text{m}$ , incluant la bande de la glace, est représenté par la ligne en tirets sur la Figure 4.3 (ajustement polynomial du spectre en dehors de  $3.3\text{--}3.6 \mu\text{m}$ ). Pour chaque source, la profondeur optique de la bande autour de  $3.4 \mu\text{m}$  est obtenue en divisant le spectre observé par ce continuum, et représentée sur la Fig. 4.4 (trait plein noir). Le maximum  $\tau_{tot}$  de chacune de ces profondeurs optiques est indiqué dans le Tableau 4.3. Dans la section 4.3.2, nous verrons que la valeur  $\tau_{tot}$  observée est la somme d’une profondeur optique  $\tau_{3.4}$ , produite par les carbones amorphes hydrogénés présents dans le MIS diffus, et de  $\tau_{3.47}$ , associée à une bande sous-jacente centrée à  $3.47 \mu\text{m}$ , produite dans les nuages denses. A cause de la superposition de ces bandes dans les lignes de visée observées sondant à

---

2. Une éventuelle différence de masse d’air entre la source de l’amas et l’étoile de référence est cependant envisagée et corrigée en minimisant les variations du spectre dues aux absorptions telluriques.

la fois du MIS diffus et dense, il est nécessaire d'estimer la contribution de la bande à 3.47  $\mu\text{m}$  pour obtenir le profil et la profondeur optique de la bande à 3.4  $\mu\text{m}$ .

### 4.3.2 La bande d'absorption à 3.47 $\mu\text{m}$ : la contribution des nuages denses

Nous avons vu à la section 3.2.2 qu'une bande large et sans structure à 3.47  $\mu\text{m}$  est observée dans les régions interstellaires denses et que sa profondeur optique  $\tau_{3.47}$  est corrélée à celle de la glace d'eau  $\tau_{3.1}$ . [Brooke *et al.* 1999] ont observé la corrélation suivante :

$$\tau_{3.47} = (0.033 \pm 0.002) \tau_{3.1} - (0.004 \pm 0.004) \quad . \quad (4.1)$$

Etant donné que les lignes de visée observées sondent à la fois du milieu diffus et dense, une bande à 3.47  $\mu\text{m}$  doit contribuer aux spectres de S7, S10 et S11. La corrélation établie par [Brooke *et al.* 1999] est utilisée pour soustraire cette bande aux profondeurs optiques observées. La profondeur optique de la bande de la glace d'eau est d'abord mesurée. Comme nos données ne nous permettent pas de connaître le continuum de part et d'autre de la bande de la glace directement, des observations photométriques de S7, S10 et S11, déterminées par [Vig *et al.* 2007] à partir de données obtenues à l'observatoire Palomar et par l'instrument IRAC du satellite Spitzer, sont utilisées pour déterminer le continuum sous-jacent de la bande à 3.1  $\mu\text{m}$ . Pour S7, les données de [Ishii *et al.* 1998] (instrument PASP2 du Mount Lemmon Observing Facility et Wyoming Infrared Observatory) sont aussi utilisées. Ces données et les continums déduits sont indiqués sur la Figure 4.2. Pour évaluer les incertitudes sur la profondeur de la bande de la glace d'eau, deux continums différents sont déterminés (par une fonction de corps noir en violet, et par une interpolation *spline* en orange). Les valeurs de  $\tau_{3.1}$  et les incertitudes correspondantes apparaissent dans le Tableau 4.3. L'équation 4.1 est alors utilisée pour déduire les valeurs de  $\tau_{3.47}$  et des incertitude associées. Sur la Figure 4.4, la bande correspondante est représentée par une gaussienne centrée en 3.47  $\mu\text{m}$ , de 0.1  $\mu\text{m}$  de largeur à mi-hauteur, et de profondeur  $\tau_{3.47}$  (courbe en tirets noirs). La courbe épaisse rouge correspond à la soustraction des valeurs représentées par les tirets aux valeurs de la courbe noire en trait plein, et représente la profondeur optique de la bande à 3.4  $\mu\text{m}$ , due uniquement au MIS diffus. Les différentes profondeurs optiques maximales sont données dans le Tableau 4.3. On peut donc conclure que les profondeurs optiques de la bande à 3.4  $\mu\text{m}$  sont similaires vers ces trois sources ( $\sim 0.07$ ) et sont parmi les plus fortes observées dans la Voie Lactée en dehors du centre galactique.

La courbe rouge présente une sous-structure qui correspond bien aux différents modes d'élongation des liaisons C-H aliphatiques (indiqués sur le Fig. 4.4 par les lignes verticales pointillées). La Figure 4.5 de gauche montre une comparaison de la bande à 3.4  $\mu\text{m}$  observée en direction de S7 (spectre avec le meilleur signal/bruit parmi les trois sources observées) avec celle détectée vers différentes sources du centre galactique. L'accord de la position et de l'intensité relative de ces modes entre ces différentes directions confirme que cette bande d'absorption est bien due aux carbones amorphes hydrogénés du MIS diffus, et qu'une éventuelle sous- ou

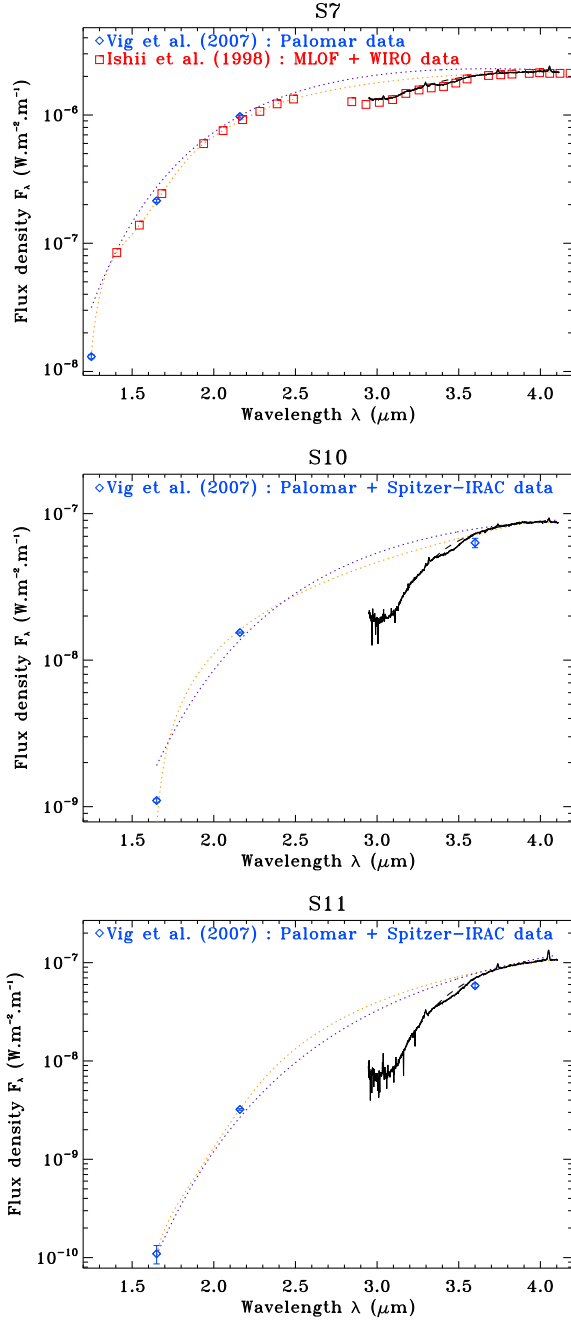


FIGURE 4.2 – Spectres observés vers les sources S7, S10, et S11 et continuum local de la bande à  $3.1 \mu\text{m}$ . Les diamants bleus et les carrés rouges représentent les données issues de [Vig et al. 2007] (Palomar et Spitzer-IRAC) et [Ishii et al. 1998] (MLOF et WIRO), respectivement. Les courbes en pointillés sont les continuum adoptés pour déterminer la profondeur optique de la bande de la glace d’eau à  $3.1 \mu\text{m}$  (deux ajustements différents sont en violet et en orange).

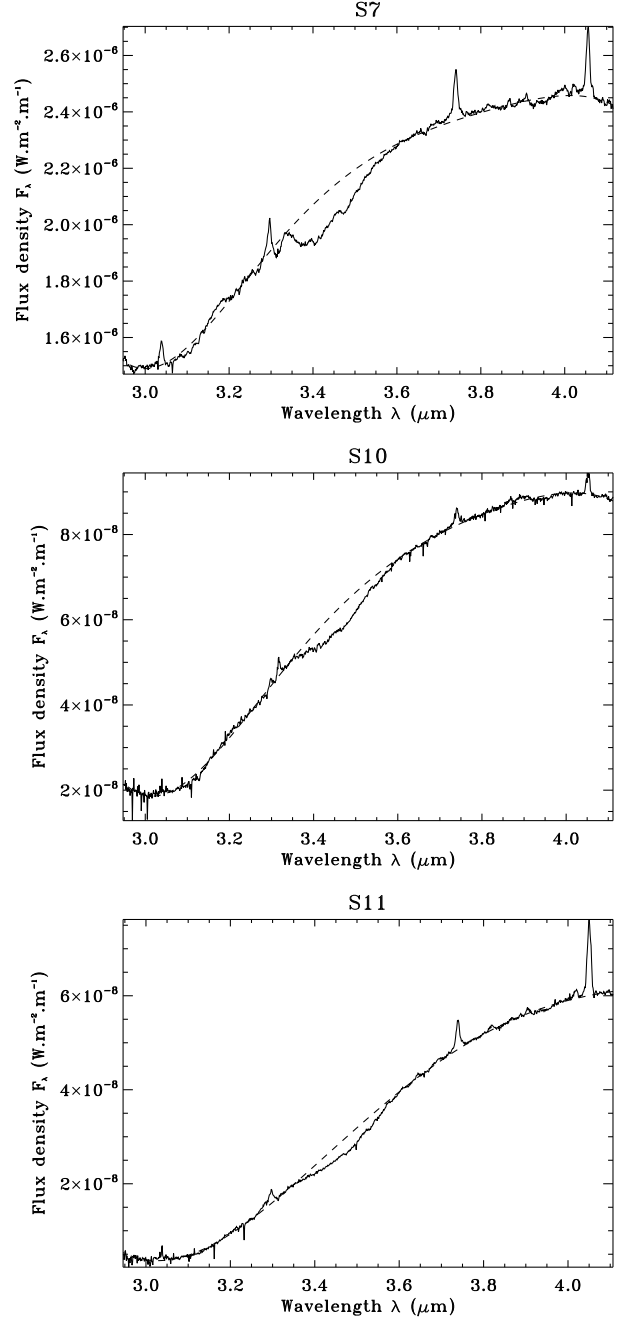


FIGURE 4.3 – Spectres observés vers les sources S7, S10, et S11 et continuum de la bande à  $3.4 \mu\text{m}$ . Les tirets représentent le continuum local pour la bande à  $3.4 \mu\text{m}$ .

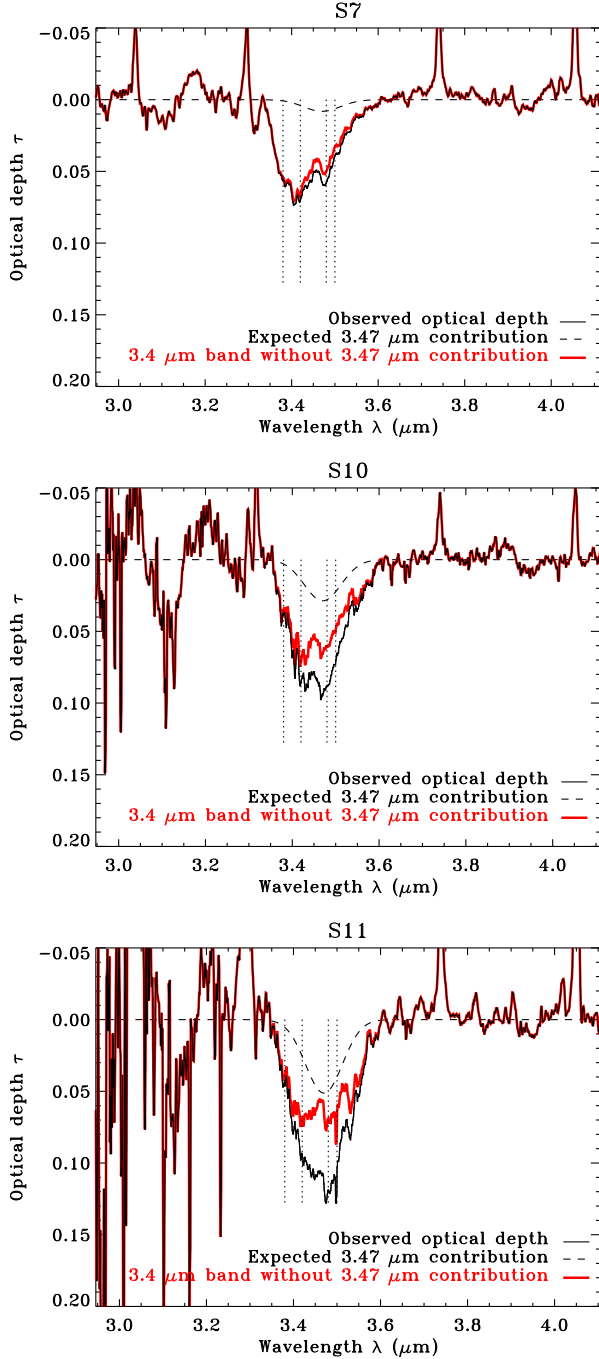


FIGURE 4.4 – Profondeur optique de l’absorption autour de 3.4  $\mu\text{m}$  observée vers les sources S7, S10 et S11. Les courbes noires en trait plein sont les profondeurs optiques (ayant un maximum  $\tau_{tot}$ ) déduites des observations et de leur continuum associé (présentés sur la Fig. 4.3). La bande à 3.47  $\mu\text{m}$  (les tirets noirs), sous-jacente à la bande observée et dont on suppose la présence due au milieu dense le long de la ligne de visée, est représentée par une gaussienne large de 0.1  $\mu\text{m}$  (FWHM) et avec une profondeur maximum  $\tau_{3.47}$ , estimée à partir de la bande de la glace d’eau (cf. Tableau 4.3). La courbe épaisse rouge est la soustraction des tirets à la courbe noire en trait plein. Cette bande de profondeur optique maximum  $\tau_{3.4}$  représente la bande à 3.4  $\mu\text{m}$  due au milieu diffus uniquement, sans la contribution de la bande à 3.47  $\mu\text{m}$ . Les positions des différentes sous-structures correspondant aux modes d’élongation des liaisons C-H aliphatiques sont indiquées par les lignes verticales en pointillés (élongation asymétrique des groupements méthyle et méthylène à 3.38 et 3.42  $\mu\text{m}$ , et élongation symétrique des groupements méthyle et méthylène à 3.48 et 3.50  $\mu\text{m}$ , respectivement).

Source	$\tau_{3.1}$	$\tau_{3.47}$ (Eq. 4.1)	$\tau_{tot}$	$\tau_{3.4}$ ( $= \tau_{tot} - \tau_{3.47}$ )
S7	$0.36 \pm 0.08$	$0.008 \pm 0.007$	$0.073 \pm 0.005$	$0.065 \pm 0.012$
S10	$1.00 \pm 0.08$	$0.029 \pm 0.009$	$0.093 \pm 0.008$	$0.064 \pm 0.017$
S11	$1.60 \pm 0.02$	$0.049 \pm 0.010$	$0.119 \pm 0.012$	$0.070 \pm 0.020$

TABLE 4.3 – **Profondeur optique des différentes bandes d’absorption de chaque ligne de visée.**  $\tau_{3.1}$  et  $\tau_{tot}$  sont déterminés directement à partir des spectres observés et divisés par le continuum associé.  $\tau_{3.47}$  est estimé à partir de la profondeur de la glace d’eau  $\tau_{3.1}$  et de l’équation 4.1 déterminée par [Brooke *et al.* 1999].  $\tau_{3.4}$  résulte de la soustraction  $\tau_{tot} - \tau_{3.47}$  (Fig. 4.4).

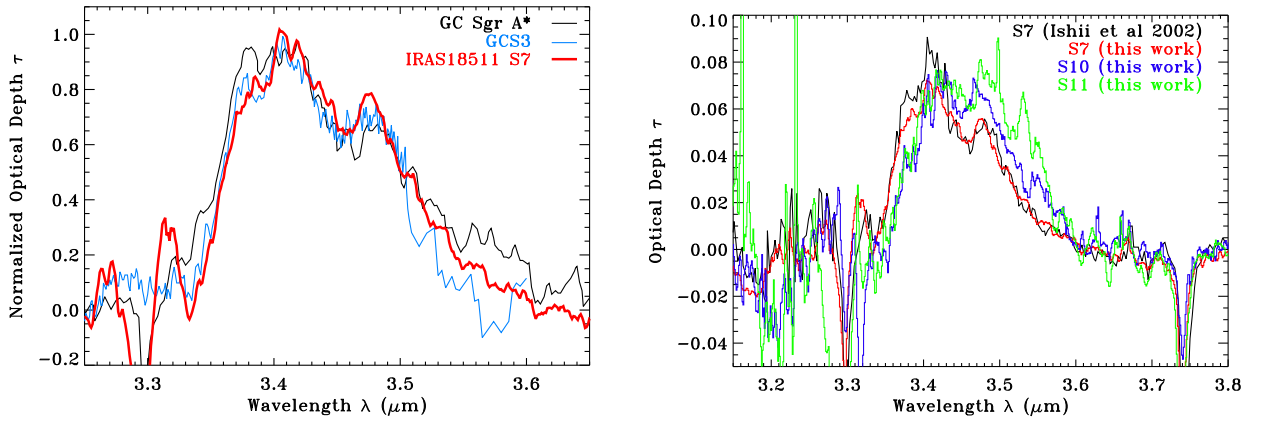


FIGURE 4.5 – **Comparaison du profil de la bande à 3.4  $\mu\text{m}$  observée vers différentes sources.** Pour tous ces spectres, la contribution de la bande à 3.47  $\mu\text{m}$  a été estimée et retirée. *A gauche* : L’absorption observée vers IRAS 18511+0146 (S7) est comparée à celle observée vers les sources du centre galactique, Sgr A\* et GCS3. Les données en direction du centre galactiques sont issues de [Chiar *et al.* 2000]. *A droite* : Les bandes à 3.4  $\mu\text{m}$  détectées vers S7, S10, et S11 (ce travail) sont tracées avec celle observée vers IRAS 18511+0146 (S7) par [Ishii *et al.* 2002].

sur-correction de la bande à 3.47  $\mu\text{m}$  (qui est une bande sans structure) ne devrait pas être importante.

La Figure 4.5 de droite montre une comparaison de la bande pour chaque source observée (S7, S10, S11) ainsi qu’une comparaison avec l’observation de la source S7 par [Ishii *et al.* 2002]. Les deux observations de la source S7 sont comparables, au bruit près. Les profils de S10 et S11 apparaissent légèrement différents de celui de S7, et de ceux vers le centre galactique. Cependant, le nombre trop faible de sources observées vers cet amas et le rapport signal/bruit non suffisamment élevé pour atteindre un tel degré de comparaison ne permettent pas de clairement discuter une différence de profil et un éventuel rapport  $\text{CH}_2/\text{CH}_3$  plus fort vers certaines de ces

sources. Il serait cependant très intéressant d'observer un nombre plus important de sources de l'amas avec un meilleur rapport signal sur bruit pour évaluer la pertinence de ces différences potentielles.

## 4.4 Distance et extinction vers IRAS 18511+0146

Pour pouvoir interpréter cette forte bande d'absorption, il est nécessaire de connaître l'extinction due au milieu diffus en direction de l'amas associé à la source IRAS 18511+0146. La connaissance de la distance jusqu'à cet amas donnerait une bonne indication sur l'extinction associée. Les différentes méthodes de mesure de cette distance sont passées en revue.

### 4.4.1 Distance déduite de la rotation galactique

La distance d'une source peut être estimée grâce à sa vitesse radiale, on parle dans ce cas de distance cinématique. On suppose alors que la vitesse radiale  $v_{LSR}$  (*local standard of rest*) observée en direction d'une source (c'est-à-dire la projection de sa vitesse le long de la ligne de visée) est due à la rotation circulaire de cette source dans la Galaxie<sup>3</sup>. La détermination de la distance cinématique nécessite donc la mesure de sa vitesse radiale  $v_{LSR}$  au travers du décalage Doppler d'une raie moléculaire. Il est possible de calculer la vitesse angulaire  $\omega$  de cette source à partir de ses coordonnées galactiques  $l$  et  $b$  et de la mesure de  $v_{LSR}$  (cf. [Brand & Blitz 1993]). La distance galactocentrique  $R$  peut alors être déterminée au moyen d'une courbe de rotation (i.e.  $\omega$  en fonction de  $R$ , e.g. [Brand & Blitz 1993]). Les valeurs de  $v_{LSR}$  associées à IRAS 18511+0146 sont dans la gamme 55 - 60 km/s [Molinari *et al.* 1996, Watt & Mundy 1999, Brand *et al.* 2001, Araya *et al.* 2004, Kurtz *et al.* 2004, Zhang *et al.* 2005, Fontani *et al.* 2006, Pandian *et al.* 2007, Araya *et al.* 2007, Fontani *et al.* 2010]. Cela correspond à une distance galactocentrique  $R \approx 5.5 - 6$  kpc. Pour les sources situées dans la partie interne de la Galaxie (celles ayant une valeur de  $R$  inférieure à 8 kpc environ, la distance galactocentrique du Soleil) comme IRAS 18511+0136, il existe deux distances possibles (intersections de la ligne de visée avec le cercle de rayon  $R$  autour du centre galactique). Cette ambiguïté de la distance cinématique est parfois difficile à résoudre. Un schéma décrivant le principe de la mesure de la distance cinématique est présenté sur la Figure 4.6. Dans le cas de la source IRAS 18511+0146, la distance proche vaut 3.9 kpc et correspond à la première intersection de la ligne de visée avec le bras du Sagittaire. La distance lointaine (i.e. la deuxième intersection) est située à 10-10.5 kpc.

[Molinari *et al.* 1996] ont été les premiers à associer une distance à la source IRAS 18511+0146. Dans leur étude, la résolution de l'ambiguïté entre les distances proche et lointaine est basée sur le critère de la hauteur de la source par rapport au plan galactique. La distance lointaine peut être exclue lorsqu'elle implique une hauteur bien au-dessus du plan galactique, car la dis-

---

3. On considère en général que les vitesses radiales observées ont des déviations inférieures à 10 km/s par rapport à un mouvement purement circulaire.

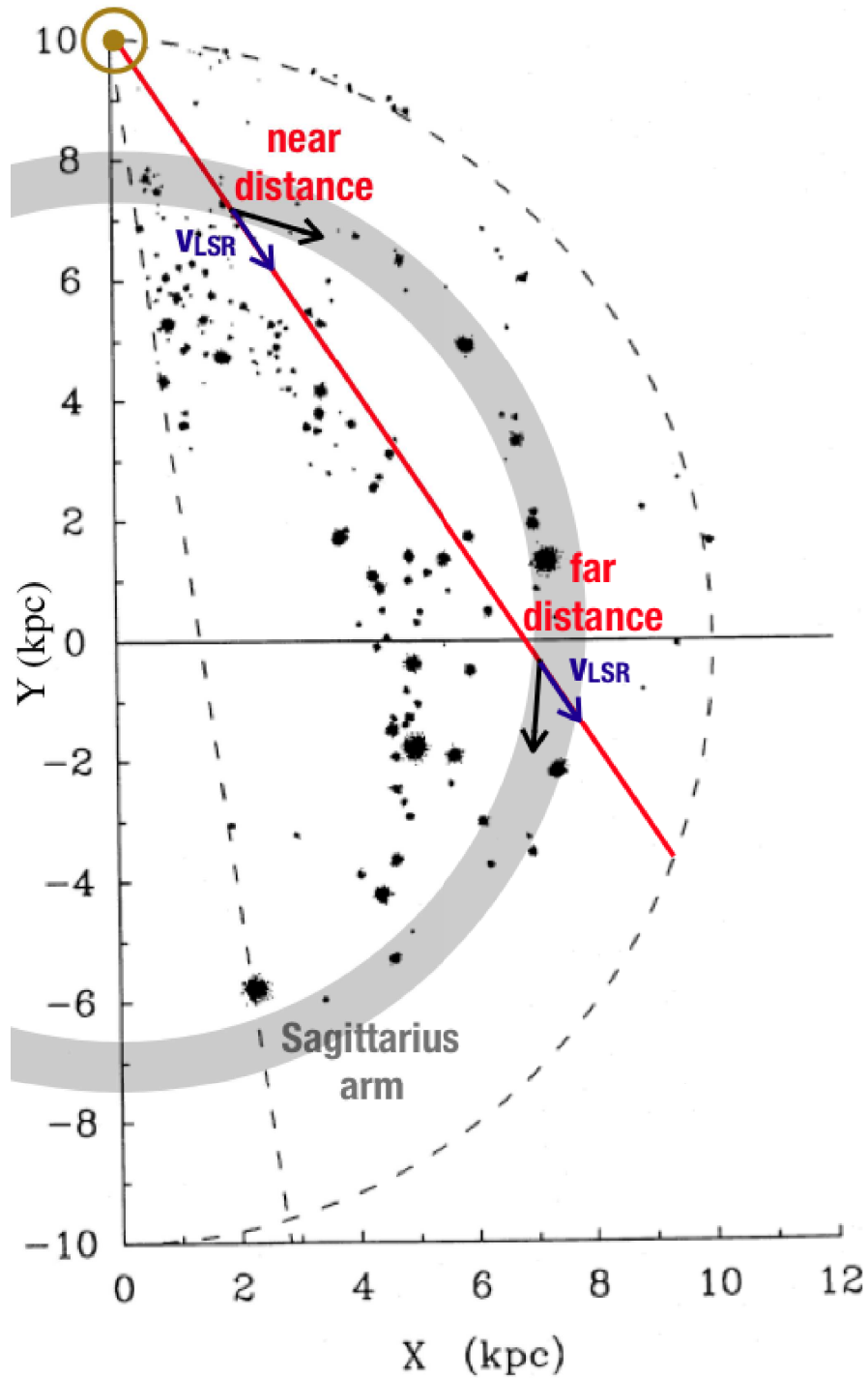


FIGURE 4.6 – Schéma illustrant l’ambiguïté de la distance cinématique. La répartition des nuages moléculaires du premier quadrant de la Galaxie est représentée (vue de face) [Solomon & Rivolo 1989] et fait apparaître les bras de la Voie Lactée. Le symbole  $\odot$  représente la position du Soleil. La ligne de visée vers IRAS 18511+0146 est représentée en rouge. Les deux positions possibles ayant la même valeur de  $v_{LSR}$  (distances proche et lointaine) sont indiquées.



tribution des sources diminue rapidement en s'éloignant de ce plan. Cependant, pour certaines sources comme IRAS 18511+0146, ce critère ne permet pas de résoudre l'ambiguïté. Pour ces sources, les auteurs choisissent arbitrairement la distance proche. Il faut donc trouver d'autres arguments pour espérer résoudre l'ambiguïté de la distance cinématique de la source IRAS 18511+0146.

#### 4.4.2 Distance et extinction déduites de diagrammes couleur-couleur

L'extinction interstellaire peut être estimée en utilisant un diagramme couleur-couleur. Le diagramme  $(J - H) - (H - K)$  des sources situées autour d'IRAS 18511+0146 et issues du catalogue *2MASS All-Sky Point Source* est représenté sur la Figure 4.7. En haut sont représentées les lignes de visée qui se situent dans un rayon de 50'' autour d'IRAS 18511+0146. L'évolution due à une extinction interstellaire croissante est indiquée par les flèches qui correspondent à la loi d'extinction donnée par [Rieke & Lebofsky 1985]. Les étoiles de la séquence principale sont situées entre les lignes en tirets rouges. Les positions des étoiles (de la séquence principale et géantes) qui ne subiraient aucune extinction sont indiquées par les croix vertes. Celles des mêmes étoiles éteintes par  $A_V = 5$  sont représentées par les croix rouges. Les sources situées à droite de la bande des étoiles de la séquence principale (dont les trois sources S7, S10 et S11) présentent un excès infrarouge local et leur extinction due au MIS diffus en avant-plan n'est pas directement accessible.

A partir de ce diagramme couleur-couleur, la position des étoiles de la séquence principale observées aux alentours d'IRAS 18511+0146 permet d'estimer l'extinction visuelle due au milieu interstellaire diffus sondé le long de ces lignes de visée. En comparant la position des sources de la séquence principale (points noirs entre les tirets rouges) avec les positions données par [Bessell & Brett 1988] (pour  $A_V = 0$ ) et la loi d'extinction interstellaire de [Rieke & Lebofsky 1985], on estime une extinction visuelle de  $A_V = 5 \pm 2$  pour ces étoiles. L'extinction interstellaire moyenne dans la Galaxie étant de 1.8 mag/kpc [Whittet 1992], cette valeur de  $A_V$  favorise la distance proche pour IRAS 18511+0146.

Dans le diagramme du bas, où les sources sont étendues à un rayon de 150'' autour d'IRAS 18511+0146, beaucoup plus de sources sont regroupées dans la bande de la séquence principale autour d'un  $A_V$  de 5, confirmant ainsi la valeur estimée ci-dessus. De plus, des sources rougies par une extinction plus élevée apparaissent aussi dans la bande de la séquence principale. Une interprétation raisonnable de la présence de ces sources est qu'elles soient situées au niveau de l'autre intersection du bras du Sagittaire avec la ligne de visée, c'est-à-dire à la distance lointaine. Pour construire ces diagrammes, nous avons représenté uniquement les sources détectées dans les trois bandes J, H et  $K_S$  et exclu celles où une limite inférieure existe sur au moins l'une des trois bandes sauf pour S10 et S11 (cf. Tableau 4.2). Cependant, l'ajout de ces sources, dont seulement une limite sur la couleur est connue, est aussi cohérent avec la présence de deux groupes de sources ayant des extinctions visuelles de 5 et 18 magnitudes environ, c'est-à-dire correspondant aux distances proche et lointaine avec un rapport extinction/distance de environ 1.8 mag/kpc.

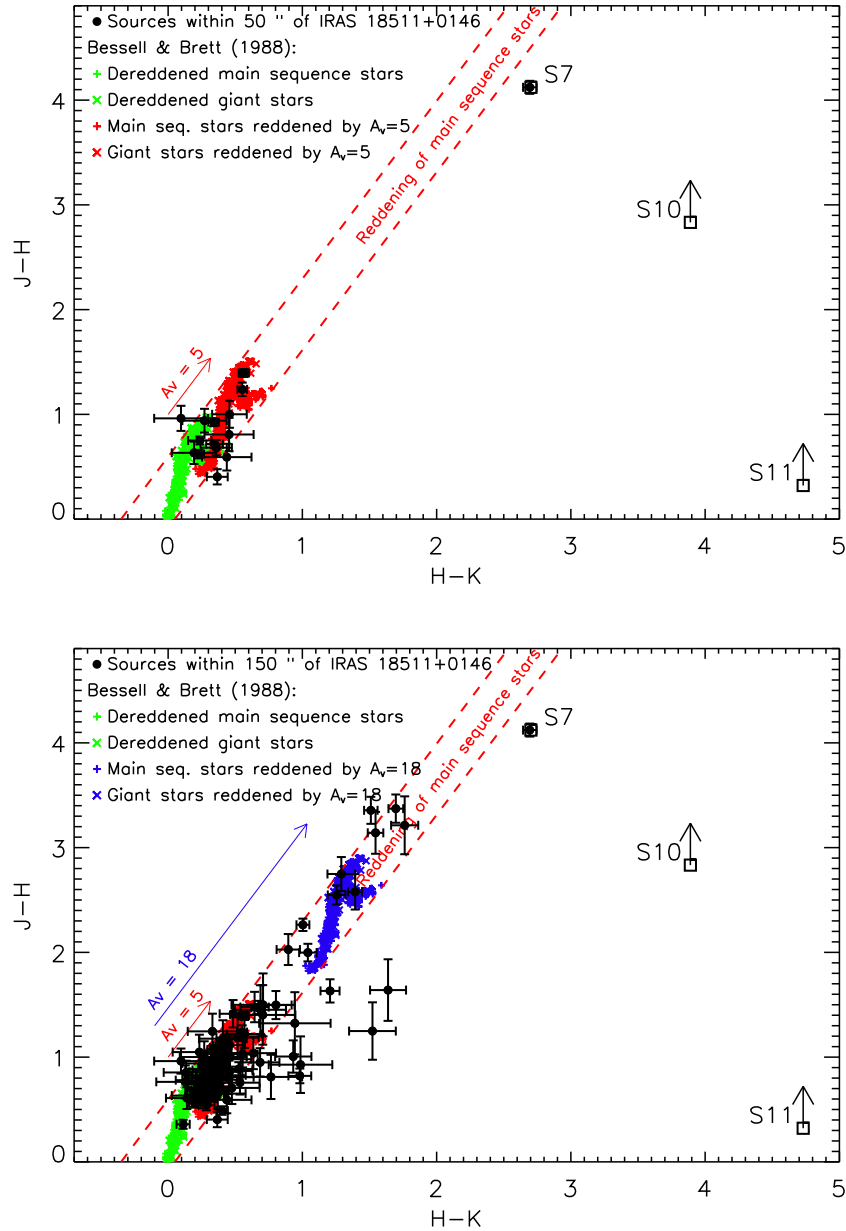


FIGURE 4.7 – Diagramme couleur-couleur  $(J-H)-(H-K)$  de sources autour d’IRAS 18511+0146. *En haut* : Les sources à l’intérieur d’un rayon de 50" autour d’IRAS 18511+0146 dont les magnitudes JHK<sub>S</sub> sont obtenues dans le catalogue 2MASS All-Sky Point Source sont représentées par les points noirs. Les lignes en tirets rouges délimitent la bande de l’extinction des étoiles de la séquence principale. Le déplacement dans ce diagramme du à une extinction interstellaire de  $A_V = 5$  est indiqué par la flèche rouge [Rieke & Lebofsky 1985]. L’emplacement des étoiles de la séquence principales non rougies est représenté par les croix vertes [Bessell & Brett 1988], et les croix rouges sont les mêmes étoiles rougies par  $A_V = 5$ . *En bas* : Même diagramme qu’en haut avec les sources à l’intérieur d’un rayon de 150" autour d’IRAS 18511+0146. Un vecteur d’extinction visuelle  $A_V = 18$  et les étoiles de la séquence principale éteintes par cette même valeur sont représentés en bleu.

### 4.4.3 Autres arguments

#### Comparaison des différentes vitesses le long de la ligne de visée

Un autre argument qui pourrait permettre de lever l'ambiguïté sur la distance jusqu'à IRAS 18511 est lié à la recherche de raies d'absorption atomiques ou moléculaires du gaz présent le long de la ligne de visée en avant-plan de la source observée. En principe, c'est la matière présente devant la source, localement plus brillante que le fond de ciel, qui peut donner lieu à de l'absorption le long de la ligne de visée. De plus, les vitesses radiales des nuages présents le long de la ligne de visée entre les distances proche et lointaine sont plus élevées que celle de la source observée  $v_{LSR}$ . La comparaison de  $v_{LSR}$  de la source avec les autres vitesses observées et résultant d'absorption du gaz en avant plan peut donc permettre de résoudre l'ambiguïté sur la distance. S'il existe au moins une absorption avec une vitesse radiale  $v \gg v_{LSR}$ , alors c'est que la source observée se situe à la distance lointaine. Pour observer le gaz en avant-plan d'une source, des traceurs abondants dans la Galaxie sont recherchés au travers, par exemple, de la raie à 21cm du gaz HI ou de celle à 6 cm associée au formaldéhyde ( $\text{H}_2\text{CO}$ ). Dans le cas d'IRAS 18511+0146, aucune absorption de  $\text{H}_2\text{CO}$  n'est observée avec une vitesse plus élevée que le  $v_{LSR}$  de la source [Araya *et al.* 2004, Araya *et al.* 2007]. Cela semble donc indiquer la distance proche pour IRAS18511. Cependant, la distance lointaine ne peut pas être définitivement exclue parce qu'il est toujours possible d'intercepter une ligne de visée où le formaldéhyde est très peu abondant.

#### Maser

Le taux de détection des masers décroît lorsque la distance augmente et peut donc fournir une indication sur la position des sources observées. L'émission d'un maser de méthanol a été détectée vers IRAS 18511+0146 à 6.7 GHz (maser  $\text{CH}_3\text{OH}$  de classe II) [Pandian *et al.* 2007, Fontani *et al.* 2010] et à 44 GHz (classe I) [Kurtz *et al.* 2004]. [Fontani *et al.* 2010] ont recherché des masers de méthanol de classe I et II (les masers de méthanol de classe I sont excités par collision, et ceux de classe II sont excités par le rayonnement IR) dans de nombreuses régions de formation d'étoiles et ont déterminé le taux de détection en fonction de la distance. Des masers à 6.7 GHz ont été détectés dans 25% des sources observées situés entre 2 et 6 kpc, le taux de détection chute à 10% entre 8 et 10 kpc, et aucun maser à 6.7 GHz n'a été observé parmi les sources situées à plus de 10 kpc. Pour les masers à 44 GHz, le taux de détection des sources situées entre 2 et 6 kpc vaut entre 30% et 45% et est nul à plus de 8 kpc. Cela suggère donc la distance proche pour IRAS 18511, même si encore une fois la possibilité d'un maser particulièrement lumineux à la distance lointaine ne peut pas être exclue.

#### Luminosité des sources

La distance lointaine implique une luminosité intrinsèque des sources observées plus forte que celle associée à la distance proche. Nous avons donc vérifié si la luminosité induite par une distance de 10 kpc environ permet d'exclure cette distance lointaine pour l'amas de protoétoiles associé à IRAS 18511. La luminosité bolométrique de la source S7 est  $1\text{-}2 \cdot 10^4 L_\odot$  à la

distance proche [Molinari *et al.* 1996, Molinari *et al.* 2000]. La distance lointaine implique une luminosité de l'ordre de  $10^5 L_{\odot}$ , c'est-à-dire que S7 soit équivalente à une étoile de type O. [Vig *et al.* 2007] ont estimé les luminosités bolométriques de S10 et S11 entre  $10^2$  et  $10^3 L_{\odot}$ . La distance lointaine implique que ces sources soient équivalentes à des étoiles de type B. Ces luminosités sont donc possibles, mais l'association de plusieurs sources si lumineuses n'est pas fréquente.

### Taille de l'amas

Le rayon de l'amas d'étoiles contenant la source IRAS 18511+0146 est estimé à environ 0.6-0.7 pc à la distance proche (e.g. [Vig *et al.* 2007, Faustini *et al.* 2009]). A une distance de 10 kpc environ, le rayon de l'amas devient 1.5-1.9 kpc. [Faustini *et al.* 2009] ont étudié les propriétés de nombreux amas de protoétoiles (dont IRAS 18511) et ils ont observé un rayon d'amas médian de 0.7 pc. Un des 23 amas observés a un rayon entre 1.7 et 1.8 pc mais tous les autres sont plus petits que 1.3 pc. Encore une fois, cet argument ne permet pas d'exclure la distance lointaine, mais montre que la distance proche est la plus probable.

Bien qu'aucun des éléments discutés ci-dessus ne permette de statuer définitivement sur l'ambiguïté sur la distance cinématique d'IRAS 18511+0146, l'ensemble de ces arguments (récapitulés dans le Tableau 4.4), et la présence d'une majorité d'étoiles de la séquence principale vers cet amas ayant une extinction visuelle de 5 mag environ, semblent indiquer la distance proche de 3.9 kpc pour l'amas associé à IRAS 18511+0146. La distance lointaine ne peut pas être complètement exclue, mais apparaît peu probable car elle nécessiterait à la fois un grand amas de plusieurs objets très lumineux, peu de formaldéhyde le long de la ligne de visée entre les distances proche et lointaine, un maser de méthanol suffisamment intense pour être détecté à 6.7 et 44 GHz, et la présence d'étoiles de la séquence principale en avant-plan à la distance proche, mais pas d'étoiles de la séquence principale détectées aux alentours d'IRAS 18511+0146. Dans la suite, nous considérons donc que IRAS 18511+0146 et les autres sources associées à cet amas se situent à 3.9 kpc.

Finalement, deux arguments différents nous permettent d'estimer l'extinction visuelle due au milieu diffus le long des lignes de visée vers IRAS 18511+0146 et les sources S10 et S11 associées.

- (i) Les diagrammes couleur-couleur ( $J - H$ )-( $H - K$ ) de sources ayant des coordonnées très proches de celles d'IRAS 18511+0146 montrent qu'une majorité des étoiles de la séquence principale observées sont rougies par une extinction  $A_V = 5 \pm 2$ , laissant supposer une extinction similaire pour les sources S7, S10 et S11.
- (ii) D'autre part, la distance jusqu'à ce groupement de sources étant estimée à 3.9 kpc, la valeur de l'extinction moyenne observée dans la Galaxie de 1.8 mag/kpc [Whittet 1992] nous permet de supposer une extinction proche de 7 magnitudes pour IRAS 18511, une valeur compatible avec l'estimation (i).

Distance	Proche : 3.9 kpc	Lointaine : 10-10.5 kpc
Hauteur dans la Galaxie <sup>a</sup>	24 pc	60-65 pc
Luminosité	S7 : $10^4 L_{\odot}$ S10 et S11 : $10^2$ - $10^3 L_{\odot}$	S7 : $10^5 L_{\odot}$ (étoile O) S10 et S11 : $10^3$ - $10^4 L_{\odot}$ (étoiles B)
Taille de l'amas <sup>b</sup>	0.6-0.7 pc	1.5-1.9 pc
Pas d'absorption de H <sub>2</sub> CO avec $v > v_{LSR}$	Comportement attendu	Possible si faible abondance de H <sub>2</sub> CO sur la ligne de visée
Maser détecté à 6.7 GHz	Taux de détection <sup>c</sup> : $\sim 25\%$	Taux de détection <sup>c</sup> : $\sim 0$ - $10\%$
Maser détecté à 44 GHz	Taux de détection <sup>c</sup> : $> 30\%$	Taux de détection <sup>c</sup> : $\sim 0\%$

<sup>a</sup> L'échelle de hauteur du gaz moléculaire dans la Galaxie est de l'ordre de 70 pc [Blitz 1991]. [Molinari *et al.* 1996] excluent la distance lointaine lorsqu'elle implique une hauteur de plus de 150 pc.

<sup>b</sup> [Faustini *et al.* 2009] ont observé une taille moyenne d'amas de 0.7 pc, et presque aucun amas de plus de 1.3 pc n'a été observé (voir le texte pour plus de détails).

<sup>c</sup> Taux de détection de masers de méthanol (classes I et II) déterminés par [Fontani *et al.* 2010] à partir d'un large échantillon de régions massives de formation d'étoiles.

TABLE 4.4 – Récapitulatif des propriétés des sources de l'amas associé à IRAS 18511+0146 pour les distances proche et lointaine.

## 4.5 Discussion

La profondeur optique de la bande d'absorption à 3.4  $\mu\text{m}$  est tracée en fonction de l'extinction visuelle sur la Figure 4.8 pour différentes lignes de visée galactiques (cf. §3.2). En plus des observations des sources S7, S10 et S11 indiquées par les carrés rouges (avec  $A_V = 7$  comme estimé dans le paragraphe précédent), les données d'autres directions observées par [McFadzean *et al.* 1989], [Adamson *et al.* 1990], [Sandford *et al.* 1991], [Pendleton *et al.* 1994], [Chiar *et al.* 2000], [Chiar & Tielens 2001], [Chiar *et al.* 2002], [Rawlings *et al.* 2003], ainsi que [Dartois *et al.* 2004a] sont aussi représentées (points noirs). Sur la figure de gauche, la profondeur optique totale observée est représentée, sans que l'éventuelle contribution de la bande à 3.47  $\mu\text{m}$  (notamment pour les observations de S7, S10, S11 et du centre galactique) soit retirée. La droite en tirets représente la corrélation  $A_V/\tau = 250$  déterminée par [Pendleton *et al.* 1994] dans le MIS diffus local. Pour la figure de droite, la contribution de la bande large à 3.47  $\mu\text{m}$  a été estimée à partir de la profondeur de la bande de la glace d'eau lorsqu'elle est observée, et retirée afin d'obtenir la contribution des a-C:H du milieu diffus. On remarque que cette

correction de la profondeur optique de la bande à  $3.4 \mu\text{m}$  en tenant compte de celle à  $3.47 \mu\text{m}$ , qui n'avait pas été effectuée jusqu'à présent, modifie notamment la position des observations du centre galactique et réduit significativement l'écart entre ces observations et celles du MIS local (mais les observations vers le centre galactique restent encore au-dessus de la corrélation  $A_V/\tau = 250$  observée dans le MIS local).

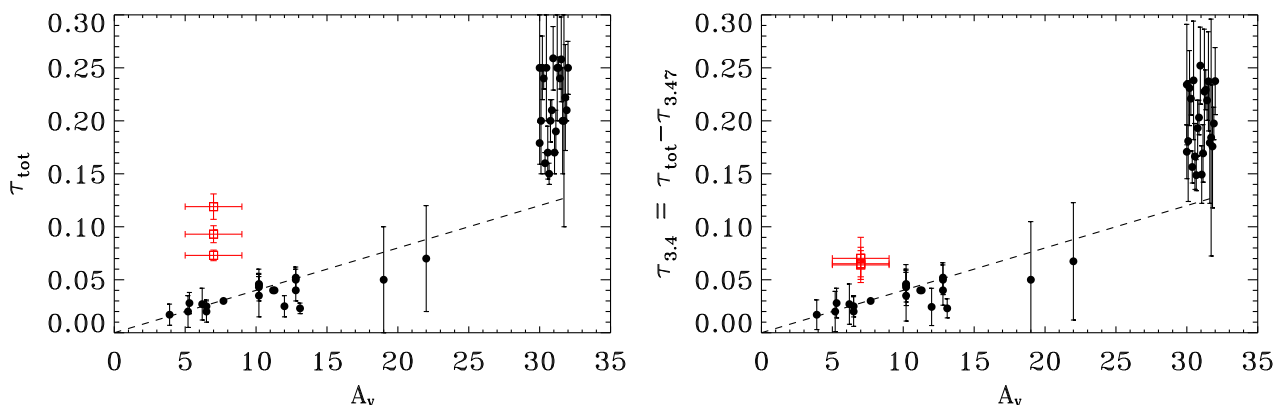


FIGURE 4.8 – Profondeur optique de l’absorption autour de  $3.4 \mu\text{m}$  en fonction de l’extinction visuelle. Les données issues de ce travail sont représentées par les carrés rouges, tandis que les points noirs correspondent à des observations obtenues par [McFadzean *et al.* 1989], [Adamson *et al.* 1990], [Sandford *et al.* 1991], [Pendleton *et al.* 1994], [Chiar *et al.* 2000], [Chiar & Tielens 2001], [Chiar *et al.* 2002], [Rawlings *et al.* 2003], et [Dartois *et al.* 2004a]. Les observations du centre galactique ( $A_V \sim 30$ ) sont légèrement décalées en  $A_V$  les unes des autres pour plus de clarté. La corrélation  $A_V/\tau = 250$  déterminée par [Pendleton *et al.* 1994] dans le MIS diffus local est représentée par les tirets. *A gauche* : La profondeur optique totale observée est représentée, sans que l’éventuelle contribution de la bande à  $3.47 \mu\text{m}$  soit retirée. *A droite* : Même figure qu’à gauche, mais après que la contribution de la bande à  $3.47 \mu\text{m}$  ait été évaluée et retirée.

Les observations représentées sur la Fig. 4.8 avec des  $A_V$  de 19 et 22 mag sont particulièrement peu contraintes comme le montrent les grandes barres d’erreur. Ces observations correspondent à des lignes de visée vers des étoiles fortement contaminées par des raies d’absorption photosphériques de OH qui se superposent en partie avec la bande des elongations C-H. Ces observations ont été analysées par [Sandford *et al.* 1995] à partir de spectres acquis par [Sandford *et al.* 1991]. Comme le soulignent les auteurs, les spectres présentés par [Sandford *et al.* 1991] et la correction difficile des raies de OH impliquent de fortes incertitudes sur la profondeur optique de la bande à  $3.4 \mu\text{m}$  le long de ces lignes de visée. De plus, pour ces deux sources, la part d’extinction visuelle qui pourrait être due à des poussières circumstellaires et non pas au MIS diffus n’est pas connue et pourrait être significative [Sandford *et al.* 1991].

La valeur de l’extinction visuelle vers le centre galactique est souvent estimée autour de 30



mag, mais il existe des variations de  $A_V$  sur de petites échelles spatiales entre environ 25 et 40 mag dans cette direction (e.g. [Cotera *et al.* 2000, Rieke *et al.* 1989] et les références citées). A cause de cette forte extinction, les sources du centre galactique ne sont pas observables dans le visible et  $A_V$  ne peut donc pas être directement mesuré. Pour obtenir l'extinction visuelle  $A_V$ , l'extinction doit d'abord être mesurée dans le proche-infrarouge et être ensuite extrapolée au visible grâce à une loi d'extinction. L'extinction vers le centre galactique dans la bande  $K_S$  est mesurée autour de 3 mag (e.g. [Cotera *et al.* 2000]). Plus récemment, [Schödel *et al.* 2010] ont déterminé une extinction moyenne vers la zone centrale de la Galaxie  $A_{K_S} = 2.54$ . Le facteur de conversion le plus utilisé pour extrapoler l'extinction  $A_{K_S}$  en extinction visuelle est le rapport  $A_V/A_{K_S} \sim 9$  donné par [Rieke & Lebofsky 1985], mais des études plus récentes vers le centre galactique indiquent de plus fortes valeurs (par exemple,  $A_V/A_{K_S} \sim 16$  [Nishiyama *et al.* 2008]). La pente de l'extinction est donc probablement plus forte que celle utilisée dans une majorité de conversion de  $A_{K_S}$  en  $A_V$ , et, comme le remarquent [Gosling *et al.* 2009], les valeurs de  $A_V$  vers le centre galactique pourraient avoir été sous-estimées. De plus, les lignes de visée vers le centre galactique traversent des bras spiraux, et donc peut-être des régions denses qui pourraient contribuer à l'extinction visuelle jusqu'à 10 mag [Whittet *et al.* 1997]. La valeur exacte de l'extinction visuelle due au milieu interstellaire diffus vers le centre galactique est donc difficile à déterminer. On peut aussi se demander si la corrélation entre l' $A_V$  et la quantité de matière le long de la ligne de visée reste commune à la fois pour les directions sondant uniquement du milieu diffus et pour celles vers le centre galactique. Sur la Fig. 4.8, les observations en direction du centre galactique ont été associées à un  $A_V$  d'environ 30 magnitudes, mais leurs positions exactes en  $A_V$ , et plus généralement la corrélation avec la colonne de matière qui est la variable estimée via l'extinction  $A_V$ , restent assez incertaines.

La Figure 4.8 montre clairement que les profondeurs optiques de la bande à 3.4  $\mu\text{m}$  détectées vers les sources S7, S10 et S11 ne suivent pas la corrélation habituellement observée dans le milieu interstellaire diffus de la Galaxie entre  $\tau_{3.4}$  et  $A_V$  ( $A_V/\tau_{3.4} \approx 250$ ). Les valeurs de  $\tau_{3.4}$  observées sont entre deux et trois fois plus élevées que la valeur attendue pour une extinction visuelle de 7. L'interprétation de ces fortes absorptions va dépendre du fait que l'extinction visuelle vers l'amas contenant IRAS 18511 est ou non la valeur estimée dans la section précédente (d'une part, à partir de l' $A_V$  des étoiles de la séquence principale proches d'IRAS 18511, et d'autre part, à partir de la distance combinée avec le rapport moyen  $A_V$  sur distance dans la Galaxie). Comme [Ishii *et al.* 2002] le soulignent, l'extinction interstellaire peut être fortement inhomogène et le rapport  $A_V$ /distance de certaines lignes de visée peut être plus fort que la moyenne galactique de 1.8 mag/kpc. Notamment, on peut s'attendre à ce que du gaz diffus reste associé aux jeunes amas d'étoiles. Un tel nuage diffus associé à une source observée pourrait donner lieu à des valeurs de  $A_V$  et  $\tau_{3.4}$  plus fortes que celles attendues par la distance de cette source. Par exemple, en direction de l'étoile jeune et massive Cyg OB2 12, une extinction de  $6 \pm 1$  mag/kpc est observée ([Whittet *et al.* 1997] et les références citées) due à la présence d'un nuage de gaz diffus associé de cette étoile.

Une extinction de l'ordre de 4-5 mag/kpc par le MIS diffus en direction d'IRAS 18511 produirait un  $A_V$  de 15-20 magnitudes, pour lequel on s'attendrait à trouver les fortes absorptions



à  $3.4 \mu\text{m}$  qui ont été observées vers S7, S10 et S11. Les diagrammes couleur-couleur (Fig. 4.7) semblent exclure une forte extinction qui serait uniforme le long de la ligne de visée, mais une extinction de 15-20 mag en direction d'IRAS 18511, à la distance de 3.9 kpc environ, n'est pas exclue si cette forte extinction est principalement locale, au niveau de l'amas d'étoiles. Cela serait alors compatible avec la présence proche d'étoiles de la séquence principale rougies par  $A_V \approx 5$ . Afin de pouvoir interpréter correctement la forte absorption des a-C:H observée le long de ces lignes de visée, il apparaît donc nécessaire de mieux contraindre l'extinction dans cette direction, et notamment de déterminer quelle part du MIS diffus sondé est local à l'amas.

## 4.6 Conclusion

La bande à  $3.4 \mu\text{m}$ , due aux élongations des liaisons C-H des carbones amorphes hydrogénés du milieu interstellaire diffus, a été observée vers 3 sources différentes d'un même amas d'étoiles en formation. La contribution du milieu interstellaire dense au travers de la bande à  $3.47 \mu\text{m}$  a été évaluée et soustraite aux spectres observés afin d'obtenir uniquement la contribution des a-C:H interstellaires. Ces observations ont confirmé la forte profondeur optique  $\tau_{3.4}$  de cette bande en direction de l'amas associé à la source IRAS 18511+0146. Les valeurs de  $\tau_{3.4}$  sont similaires pour les trois lignes de visée proches observées et représentent les plus fortes profondeurs optiques de la bande à  $3.4 \mu\text{m}$  observées dans la Voie Lactée en dehors du centre galactique.

Les estimations de la distance et de l'extinction en direction de cet amas ont été discutées en confrontant différents arguments. IRAS 18511 et les sources associées se trouvent donc très probablement à la distance proche, c'est-à-dire à 3.9 kpc. Cela implique que la profondeur optique  $\tau_{3.4}$  observée est bien plus élevée que celle attendue à cette distance à partir de l'extinction interstellaire moyenne dans la Galaxie. Différent cas peuvent donc être envisagés :

- (i) La distance lointaine de 10-10.5 kpc n'a pu être totalement exclue, on peut donc envisager le cas où IRAS 18511 et son amas se trouveraient à cette distance. En prenant la valeur galactique moyenne du rapport  $A_V/\text{distance}$ , l'extinction attendue le long de la ligne de visée serait alors de l'ordre de 18-19 mag, et la profondeur optique  $\tau_{3.4}$  observée serait donc cohérente avec la corrélation  $A_V/\tau_{3.4} \approx 250$  observée dans le MIS diffus local. Cette direction ne sonderait alors pas un milieu différent de celui sondé par d'autres directions galactiques, mais offrirait alors des lignes de visée privilégiées pour observer de grandes quantités de milieu interstellaire diffus. Ce scénario, où IRAS 18511 se trouve à plus de 10 kpc, est toutefois assez improbable au vu des différents arguments qui favorisent systématiquement la distance proche (cf. §4.4).
- (ii) La seconde possibilité est celle où IRAS 18511 se trouve à environ 3.9 kpc et où il existe un nuage diffus local associé à l'amas. L'extinction générée par ce nuage diffus serait alors plus forte que celle qu'on aurait pu attendre à cette distance. Il est donc possible que la corrélation  $A_V/\tau_{3.4} \approx 250$  soit vérifiée dans ces conditions.

- (iii) La dernière possibilité est celle représentée sur la Fig. 4.8. Si IRAS 18511 se trouve à 3.9 kpc, et qu'il n'existe pas de nuage diffus local associé à cet amas, alors le milieu diffus sondé sur la ligne de visée devrait être assez homogène et causer une extinction de l'ordre de 7 magnitudes. Les observations de S7, S10 et S11 mettraient alors en évidence que la corrélation jusqu'alors observée entre  $\tau_{3.4}$  et  $A_V$  n'est pas toujours vérifiée et qu'il faudrait envisager une distribution non homogène des carbones amorphes hydrogénés dans le milieu interstellaire diffus de la Galaxie.

Chacune de ces possibilités met en avant l'intérêt présenté par cette ligne de visée particulière pour l'étude des poussières interstellaires.

## Troisième partie

Production et étude en laboratoire  
d'analogues de poussières interstellaires  
carbonées



# Production expérimentale de carbones amorphes hydrogénés

## Sommaire

<b>5.1</b>	<b>Gaz précurseur et système de pompage</b>	<b>91</b>
5.1.1	Hydrocarbures utilisés	91
5.1.2	Ajout d'autres gaz	92
5.1.3	Pompage et contrôle de la pression	92
<b>5.2</b>	<b>Réacteur plasma</b>	<b>92</b>
5.2.1	Cellule plasma	92
5.2.2	Cavité micro-onde et plasma	93
<b>5.3</b>	<b>Echantillons produits</b>	<b>94</b>
5.3.1	Formation du film d'a-C:H	94
5.3.2	Substrat	95
5.3.3	Aspect du film déposé	95
5.3.4	Différents types d'a-C:H produits	95

L'étude des carbones amorphes hydrogénés interstellaires doit passer en premier lieu par l'observation qui permet de contraindre les environnements et évolutions spectroscopiques de ce matériau dans l'espace. L'approche expérimentale est complémentaire et consiste en la production et l'étude en laboratoire de matériaux analogues de ces poussières interstellaires. La plus grande part de ce travail de thèse, regroupée dans cette troisième partie du manuscrit, suit cette approche expérimentale afin de caractériser les a-C:H interstellaires, de mieux comprendre le rôle qu'ils jouent dans la Galaxie et comment ils évoluent.

Nous avons vu au chapitre 3 qu'il existe différentes méthodes expérimentales de production d'analogues interstellaires visant à reproduire les matériaux des poussières hydrocarbonées aliphatiques observées dans le MIS diffus. Au cours de cette thèse, les carbones amorphes hydrogénés étudiés en tant qu'analogues interstellaires sont produits sous forme de films, déposés sur des substrats, grâce à un plasma d'hydrocarbure (cette méthode expérimentale est désignée par PEVCD pour *Plasma-Enhanced Chemical Vapor Deposition*). L'expérience permettant la production de ces échantillons est décrite dans ce chapitre et est schématisée sur la Fig. 5.1. Les principaux éléments constituant ce dispositif expérimental sont les suivants :

- une ligne d'introduction des gaz précurseurs

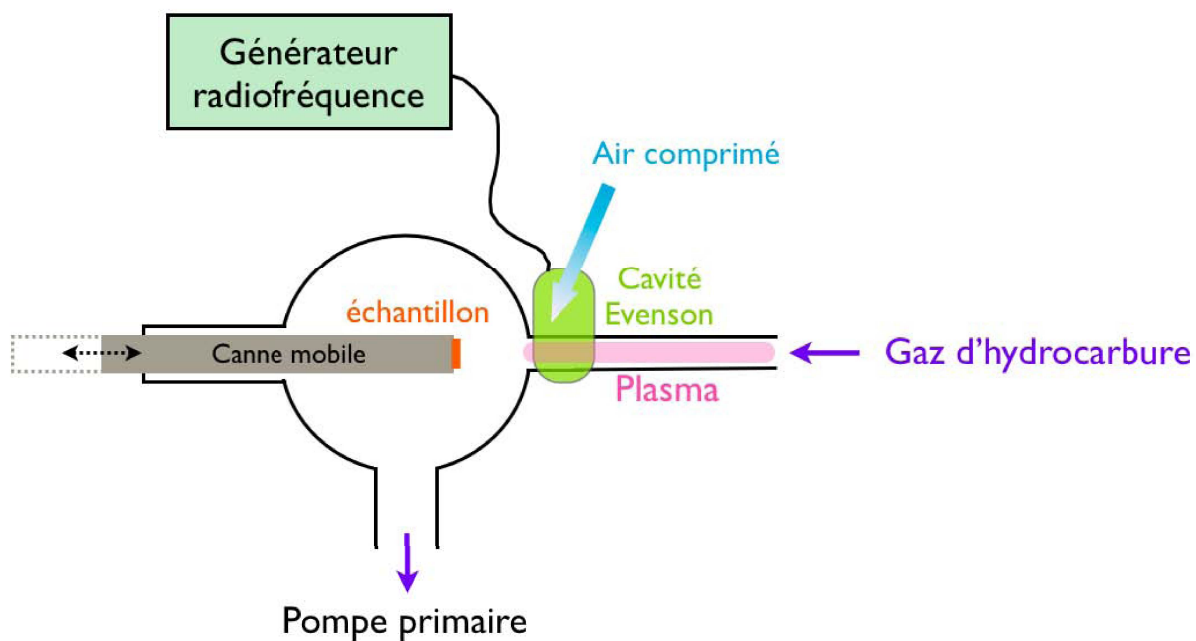
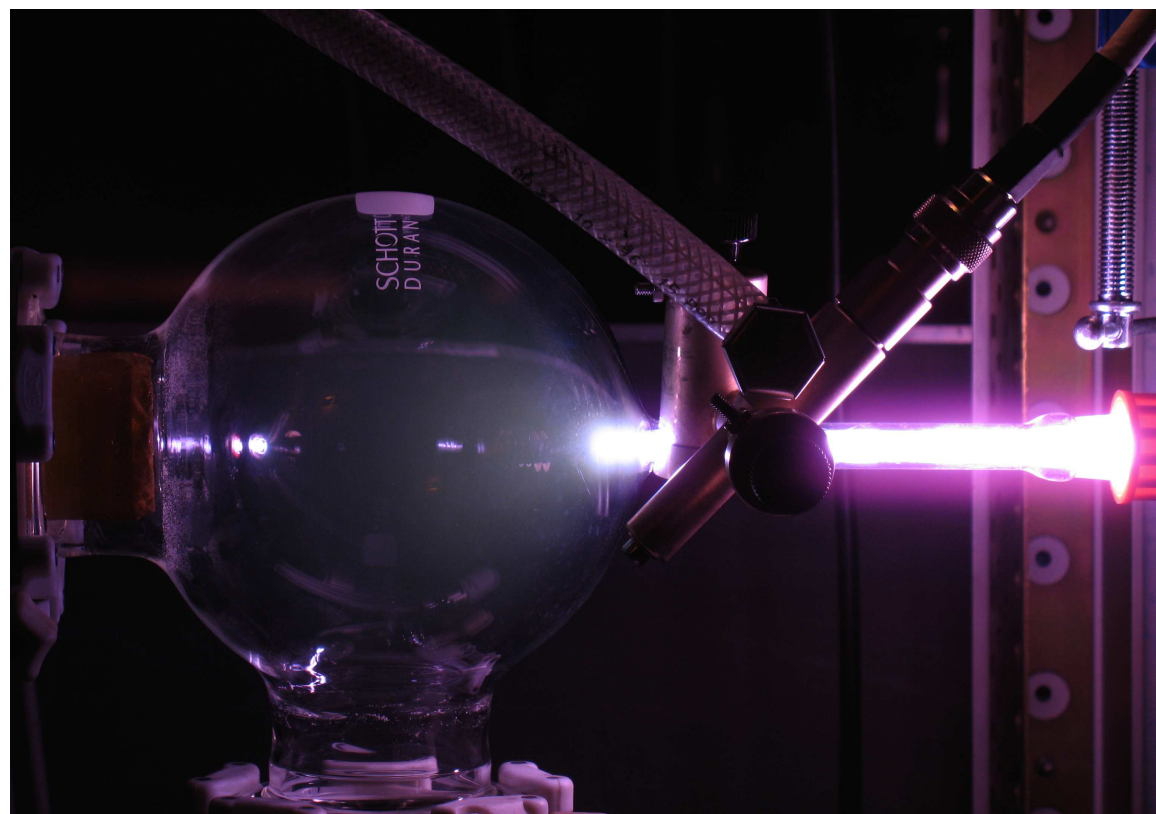


FIGURE 5.1 – Photo et schéma de l'expérience permettant la production des a-C:H. *En haut* : photo de la cellule contenant le plasma d'hydrocarbure entretenu par la cavité micro-onde. Sur cette photo, la canne portant l'échantillon est reculée, loin du plasma. *En bas* : schéma du principe de l'expérience.

- une enceinte en verre, appelée “cellule plasma”, sous vide, et dans laquelle le plasma est formé (photo de la Fig. 5.1)
- une cavité Evenson reliée à un générateur micro-onde, permettant la formation du plasma
- une canne coulissante portant le substrat sur lequel le film d’a-C:H va se déposer
- une pompe primaire et plusieurs jauges de pression.

## 5.1 Gaz précurseur et système de pompage

### 5.1.1 Hydrocarbures utilisés

Le précurseur utilisé, à partir duquel le plasma se forme, et amenant les ingrédients qui constituent l’a-C:H, est un gaz d’hydrocarbure (qui pourra être amené depuis une bouteille de gaz ou bien depuis une fiole contenant un hydrocarbure sous forme liquide à pression atmosphérique). Au cours de cette thèse, nous avons utilisé différents gaz précurseurs, ayant des rapports C/H et des types d’hybridation du carbone différents, pour essayer de former différents types d’échantillons [Schwarz-Selinger *et al.* 1999] : nous avons testé la production d’a-C:H à partir de plasma de méthane ( $\text{CH}_4$ ), de butadiène ( $\text{C}_4\text{H}_6$ ), d’acétylène ( $\text{C}_2\text{H}_2$ ), de toluène ( $\text{C}_7\text{H}_8$ ), de limonène ( $\text{C}_{10}\text{H}_{16}$ ), d’isobutane ( $\text{C}_4\text{H}_{10}$ ), et de phénylacétylène ( $\text{C}_8\text{H}_6$ ). Par la suite, la majorité des échantillons d’a-C:H sont produits à partir de méthane ou de butadiène (§5.3.4).

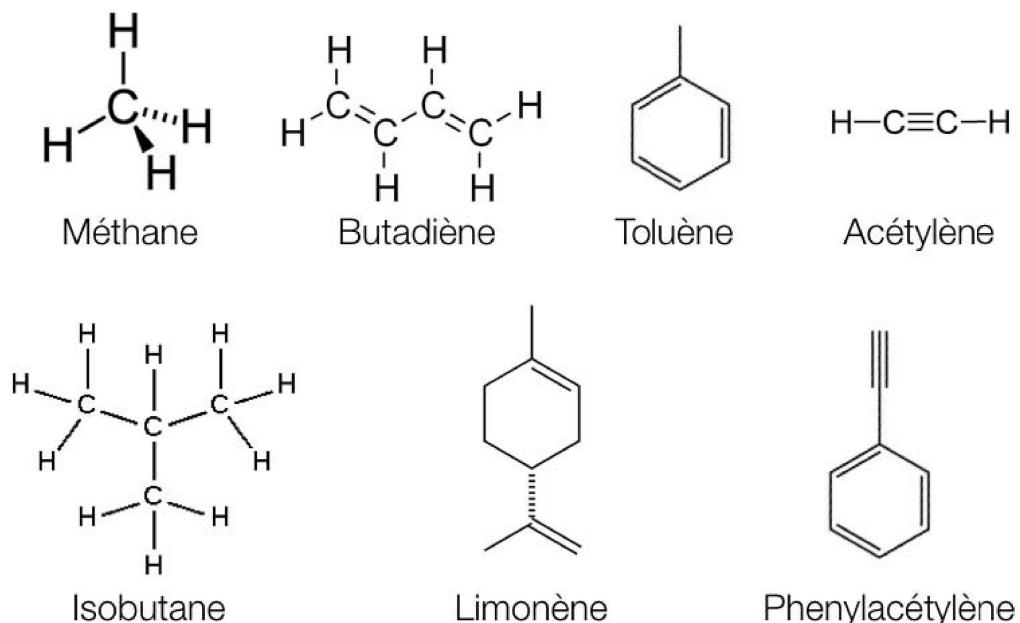


FIGURE 5.2 – Représentation des différents hydrocarbures utilisés comme précurseurs.



### 5.1.2 Ajout d'autres gaz

Il est possible d'ajouter un gaz inerte, comme de l'argon, au mélange précurseur. Cela peut permettre de stabiliser le plasma et de diluer le flux d'hydrocarbure tout en maintenant une pression nécessaire pour que le plasma puisse exister. L'ajout d'argon permet donc de faciliter la production du plasma, mais génère aussi un plasma produisant plus de photons énergétiques, qui interagissent avec le matériau produit, et peuvent éventuellement modifier ses propriétés. Les changements de conditions de déposition induits par un ajout de gaz diluant, n'interagissant pas chimiquement avec le dépôt produit, sont discutés par [Seth & Babu 1993].

Au lieu de l'argon, on pourra aussi ajouter de l'hydrogène moléculaire au gaz précurseur : les photons produits par un plasma d'hydrogène sont aussi très énergétiques. L'hydrogène pourra également avoir une conséquence sur le taux d'hydrogénation du matériau produit par la présence d'hydrogène atomique supplémentaire dans le plasma.

### 5.1.3 Pompage et contrôle de la pression

La cellule plasma, dans laquelle le gaz précurseur entre, est reliée à une pompe primaire. C'est une pompe à palettes bi-étagée Leybold Trivac D65B dont le débit est de 65 m<sup>3</sup>/h. Une vanne tiroir sépare la pompe de la cellule plasma. Le vide limite de ce dispositif est de quelques 10<sup>-4</sup> mbar. Cette pompe permet de faire le vide dans la cellule avant d'allumer le plasma (un pompage de quelques heures est effectué avant toute production d'échantillon afin de limiter les contaminations par l'oxygène contenu dans l'eau résiduelle par exemple) et de faire circuler et évacuer le gaz précurseur au cours de la production d'échantillons.

Le flux du gaz précurseur est contrôlé par ce système de pompage et des microfuites que l'on ajuste à la sortie des bouteilles de gaz. On dispose de deux jauges de pression : l'une est une jauge Alcatel primaire de type Pirani, placée au niveau de la ligne de mélange des gaz précurseurs (pression  $P_1$ ), et l'autre est une jauge combinée (primaire et secondaire) Pirani-Penning (Alcatel ACC1009), mesurant la pression entre la cellule plasma et la pompe (pression  $P_2$ ). Les vannes et les deux jauges permettent de réguler une pression  $P_2$  constante dans l'enceinte autour d'une valeur choisie, généralement entre 10<sup>-3</sup> et 10<sup>-1</sup> mbar (pression dans la cellule plasma au cours de la production d'un échantillon, la pression  $P_1$  correspondante lue dans la ligne d'introduction des gaz est de l'ordre de la fraction de mbar). Si le gaz précurseur est un mélange de différents composés, les proportions de chacun de ces composés sont contrôlées grâce aux rapports des pressions partielles.

## 5.2 Réacteur plasma

### 5.2.1 Cellule plasma

Le gaz précurseur circule dans la cellule plasma (Fig. 5.1), qui est formée par un tube en pyrex dans lequel le plasma se forme, relié à une sphère en verre avec deux ouvertures

permettant une connexion avec la canne portant le substrat d'une part, et vers la pompe d'autre part<sup>1</sup>. Cette forme engendre une détente du gaz entre le tube et la sphère ( $P_1$  et  $P_2$  sont respectivement les pressions avant et après la détente), permettant ainsi de confiner le plasma dans le tube.

Le plasma, qui permet de former un dépôt sur le substrat, forme aussi un dépôt carboné sur les parois de la cellule plasma, en particulier dans le tube. Ce dépôt, lorsqu'il devient trop important, empêche de stabiliser le plasma, et fragilise la cellule en chauffant fortement de manière très localisée au cours de l'expérience. Par conséquent, il est nécessaire de nettoyer la cellule entre la production de chaque dépôt. Pour cela, elle est placée dans un four à 600 °C sous une hotte d'évacuation pendant plusieurs heures pour effectuer une pyrolyse sous atmosphère.

### 5.2.2 Cavité micro-onde et plasma

Le plasma est créé dans le tube en pyrex, à partir du gaz précurseur, grâce à une cavité micro-onde. Cette cavité (cavité Evenson de la marque Sairem, en photo sur la Fig. 5.3) est ajustée sur le tube et est reliée à un générateur micro-onde par un câble coaxial. Le générateur (Sairem GMP 03K/SM) permet de délivrer des micro-ondes (2450 MHz) d'une puissance incidente pouvant être réglée entre 0 et 300 W, et de mesurer la puissance réfléchie. Cette puissance réfléchie sera minimisée (autour de 0 ou quelques watts tout au plus) en ajustant au mieux la cavité sur le tube et les deux vis présentes sur la cavité. Une arrivée d'air pulsé est connectée à la cavité et permet d'éviter une trop forte température.

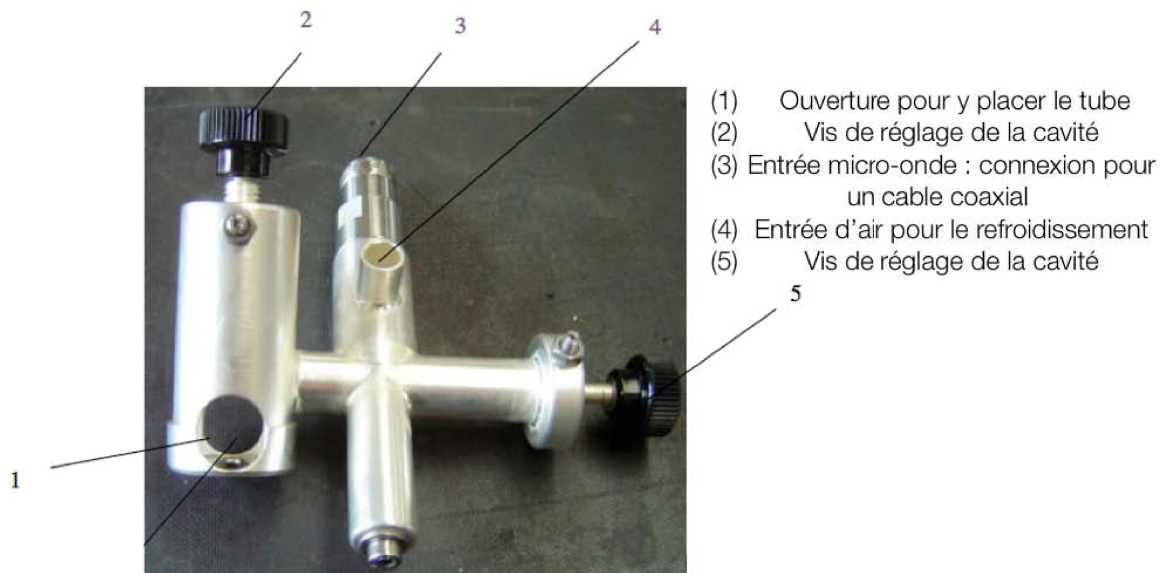


FIGURE 5.3 – Cavité micro-onde de type Evenson utilisée pour générer le plasma.  
Source : Sairem.

1. Ces cellules sont fabriquées par Vincent Guerrini, verrier au LATMOS

Le générateur permet la création de micro-ondes qui vont résonner dans la cavité afin d'exciter efficacement le gaz précurseur circulant dans le tube. L'absorption de ces micro-ondes dissocie et ionise les molécules du gaz créant ainsi un plasma. Si besoin, le plasma peut être initié plus facilement grâce à un pistolet à décharge haute tension.

Dans la pratique, on utilisera des puissances incidentes principalement entre 50 et 100 W. Des puissances plus fortes permettent de produire des a-C:H différents (dont le gap est plus faible, cf. chapitre suivant), mais sont évitées pour des raisons de sécurité. En effet, nous avons observé que la formation de dépôt sur les parois intérieures du tube couplée à de fortes puissances résulte en l'apparition dans le tube de points localement très chauds pouvant aboutir à la casse de la cellule plasma pendant l'expérience. Afin de minimiser ce risque de casse, les fortes puissances ont donc été évitées et le montage a été sécurisé en ajoutant des panneaux pour éviter la projection éventuelle de verre.

## 5.3 Echantillons produits

### 5.3.1 Formation du film d'a-C:H

Une fois le plasma du gaz précurseur stable, le substrat, se trouvant au bout d'une canne couissant l'intérieur de l'enceinte, peut être avancé face au plasma pour débiter la formation du dépôt. Le plasma ionise et fragmente les molécules du précurseur formant ainsi des radicaux qui constitueront les "ingrédients" du dépôt produit (c'est pourquoi, au premier ordre, la nature du précurseur hydrocarbure n'a pas une grande influence sur le matériau produit puisqu'il sera décomposé en radicaux élémentaires). La déposition de ces radicaux et ions, issus du plasma, sur le substrat aboutit à la formation d'une couche d'a-C:H dont l'épaisseur augmente progressivement.

La formation et l'accroche de l'a-C:H synthétisé par le plasma se fera sur le substrat avec une efficacité dépendant des conditions expérimentales (flux d'hydrocarbure, pression dans l'enceinte qui détermine notamment la vitesse d'impact des molécules sur le substrat, nature du substrat, ...). De cette efficacité de formation et de l'épaisseur du film voulue (généralement de l'ordre de quelques micromètres) découle naturellement le temps de déposition nécessaire (variable entre quelques minutes et quelques heures). Le contrôle de l'épaisseur du dépôt peut être estimé par l'observation qualitative du nombre croissant d'anneaux d'interférences, visibles autour de l'échantillon et traduisant le gradient d'épaisseur augmentant avec la durée de déposition<sup>2</sup>. Nous verrons dans le chapitre suivant comment déterminer plus précisément l'épaisseur des échantillons. Lorsqu'un film d'épaisseur suffisante est obtenu, l'excitation micro-onde et le pompage sont stoppés, et l'échantillon peut être récupéré pour des analyses *ex situ*.

---

2. Le même phénomène optique se produit par exemple lorsqu'une tache d'essence s'étale sur une flaque d'eau : les interférences résultant de l'épaisseur de la tache sont constructives pour certaines longueurs d'onde. Donc les différentes épaisseurs sont visibles par les différentes couleurs de la tache.

Substrat	Gamme de transmission ( $\mu\text{m}$ )	Indice optique (à 2 $\mu\text{m}$ )	Solubilité
SiO <sub>2</sub> (Quartz)	0.15 - 4	1.52	insoluble
KBr (Bromure de potassium)	0.23 - 25	1.54	très soluble
KCl (Chlorure de potassium)	0.23 - 15	1.42	très soluble
CaF <sub>2</sub> (Fluorure de calcium)	0.13 - 12	1.42	peu soluble
MgF <sub>2</sub> (Fluorure de magnésium)	0.11 - 7.5	1.37	peu soluble
CsI (Iodure de Césium)	0.24 - 70	1.74	très soluble
ZnSe (Sélénure de Zinc)	0.5 - 19	2.38	insoluble
Ge (Germanium)	1.8 - 23	4.12	insoluble

TABLE 5.1 – Différents types de substrat et leurs propriétés.

### 5.3.2 Substrat

Les substrats utilisés comme supports des films d'a-C:H sont des fenêtres de 20 mm de diamètre et 2 mm d'épaisseur, à faces parallèles, transparentes dans la gamme où l'on souhaite mesurer la transmission de l'échantillon (UV-visible et/ou infrarouge). Les substrats en quartz (SiO<sub>2</sub>) ont beaucoup été utilisés car ils sont transparents dans le visible et une partie de l'infrarouge, solides et facilement réutilisables (les substrats sont nettoyés à l'aide d'une polisseuse et/ou d'éthanol). Pour avoir accès à une gamme infrarouge plus large, d'autres types de substrat, souvent plus fragiles ou hygroscopiques ou plus chers, ont aussi été utilisés. Les différents substrats qui ont pu être utilisés au cours de cette thèse, et leurs propriétés, sont récapitulés dans le Tableau 5.1.

### 5.3.3 Aspect du film déposé

Comme le montre la Fig. 5.4 présentant différents exemples d'a-C:H produits, les échantillons sont translucides (plus ou moins opaques suivant l'épaisseur) et colorés, du jaune à l'orange-marron. Pouvant s'altérer au contact de l'air, on veillera à effectuer avec les analyses des échantillons produits juste après leur production et on les conservera dans un dessiccateur maintenu sous vide primaire.

### 5.3.4 Différents types d'a-C:H produits

La figure 5.4 montre que l'on produit une large gamme de carbones amorphes hydrogénés. Ces différences sont tout d'abord apparentes par les couleurs des échantillons, qui traduisent leurs propriétés d'absorption dans le visible. Nous verrons plus en détails dans les chapitres suivants quelles sont les autres propriétés différenciant les a-C:H. Ces différences sont engendrées par les conditions expérimentales variées lors de la production des échantillons (pression, pré-curseurs, puissance micro-onde, distance entre le substrat et l'échantillon). L'énergie d'impact

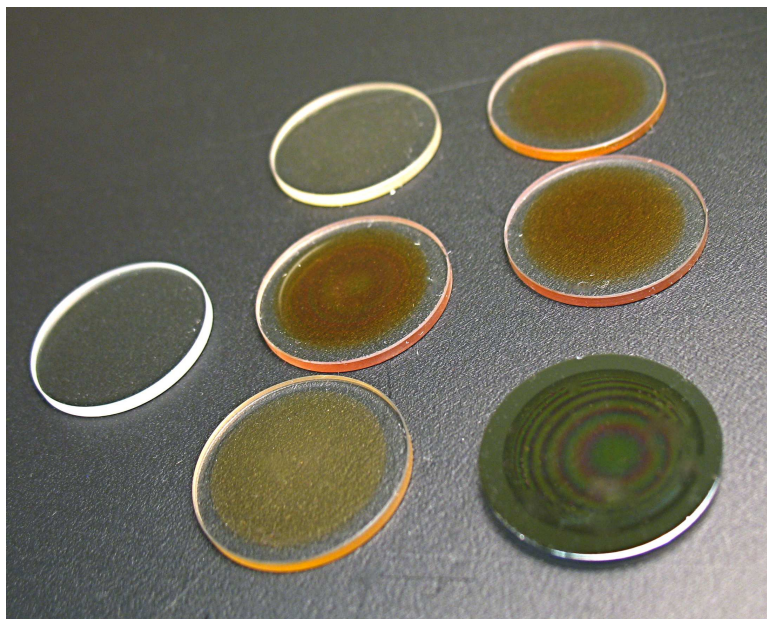


FIGURE 5.4 – **Photo de différents échantillons d'a-C:H produits.** Les échantillons présentés ont différentes épaisseurs, et les substrats utilisés ici sont en quartz ou en germanium (en bas à droite). Un substrat de quartz sans a-C:H est placé à gauche pour comparaison. On remarque différentes couleurs traduisant différents types d'a-C:H. Sur l'échantillon en bas à droite, on distingue des franges d'interférences.

des ions et des radicaux issus du plasma, qui dépend principalement de la puissance absorbée par le plasma et de la pression dans la cellule, joue notamment un rôle dans le type de matériaux formés.

Pour obtenir des conditions expérimentales différentes en augmentant la vitesse d'impact des ions et radicaux sur l'échantillon, nous avons cherché à appliquer une tension négative sur la canne portant l'échantillon et sur une grille placée dans ce but juste devant le substrat. Ce dispositif a été élaboré dans le but d'accélérer les ions/radicaux produits pour modifier la structure du film [Schwarz-Selinger *et al.* 1999, Rusli *et al.* 1996]. Cependant, nous avons rencontré des difficultés à atteindre des conditions expérimentales où la pression est à la fois suffisamment forte pour que le plasma soit stable et aboutisse à la formation efficace d'a-C:H, mais aussi suffisamment faible pour éviter les décharges entre le plasma et la canne portant l'échantillon.

Au cours de cette thèse, nous avons en particulier fabriqué deux types d'a-C:H différents, appelés a-C:H 1 et a-C:H 2, et dont les conditions de production sont données dans le Tableau 5.2. D'apparence, les a-C:H 1 sont jaunes et peu colorés, alors que les a-C:H 2 sont plus foncés et orange-marron. Il faut garder à l'esprit que les conditions expérimentales du Tableau 5.2 sont données à titre d'exemple et sont celles qu'on a souvent cherché à reproduire pour synthétiser ces deux types d'a-C:H. Cependant, nous avons exploré des conditions de production variées,

et des a-C:H aux propriétés tout à fait similaires à celles des a-C:H 1 ou 2 peuvent aussi être produits dans des conditions différentes de celles données dans le Tableau 5.2.

Type d'a-C:H	Précurseurs	Pression (partielle) $P_1$ (mbar)	Pression (partielle) $P_2$ (mbar)	Puissance Incidente (W)
a-C:H 1	Méthane	$\sim 4$	$3-4 \cdot 10^{-2}$	$\sim 80$
a-C:H 2	Butadiène	2 - 2.5	$1.5-2 \cdot 10^{-2}$	$\sim 60$
	Argon	0.5-1	$3-3.5 \cdot 10^{-2}$	

TABLE 5.2 – **Conditions expérimentales de production des a-C:H 1 et des a-C:H 2.**

Les valeurs expérimentales données ici sont des exemples parmi les différentes conditions de production qui ont été explorées. On remarque que, pour un mélange de gaz précurseurs, on ne peut pas facilement déduire les proportions relatives de chaque gaz car les jauges de pression réagissent différemment pour chaque gaz et chaque gamme de pression. Ces pressions sont celles mesurées lorsque le plasma est éteint (les valeurs indiquées sont légèrement différentes lorsque le plasma est allumé).





# Caractérisation des a-C:H produits

## Sommaire

<b>6.1</b>	<b>Avantages et principe de la spectroscopie</b>	<b>99</b>
<b>6.2</b>	<b>Spectroscopie UV-visible</b>	<b>100</b>
6.2.1	Montage expérimental	100
6.2.2	Transmission et coefficient d'absorption	102
6.2.3	Gap optique	102
<b>6.3</b>	<b>Spectroscopie infrarouge</b>	<b>105</b>
6.3.1	Spectromètre infrarouge à transformée de Fourier	105
6.3.2	Spectres	106
6.3.3	Franges d'interférence	111
<b>6.4</b>	<b>Propriétés déduites des mesures spectroscopiques et d'autres études</b>	<b>119</b>
6.4.1	Estimation de l'indice de réfraction	119
6.4.2	Fraction sp <sup>2</sup> /sp <sup>3</sup>	120
6.4.3	Contenu en hydrogène et densité des a-C:H	121
6.4.4	Coefficient d'absorption intégré sur la bande à 3.4 $\mu\text{m}$	121

## 6.1 Avantages et principe de la spectroscopie

Une des méthodes utilisées pour caractériser les échantillons, produits par l'expérience décrite dans le chapitre précédent, est la mesure de leur spectre de transmission dans différentes gammes spectrales. Ces analyses présentent l'avantage d'être non destructives. Un autre intérêt de l'utilisation de cette technique en astrophysique de laboratoire est qu'elle fournit des résultats directement comparables aux absorptions observées dans le milieu interstellaire. Dans le cas d'observations astrophysiques, la lumière provenant d'une étoile est absorbée par la poussière du milieu interstellaire se trouvant sur la ligne de visée, puis est détectée par un télescope au sol ou un satellite spatial. Lors de la mesure d'un spectre de transmission d'un analogue de laboratoire, un détecteur permet de mesurer la lumière provenant d'une source (infrarouge ou UV/visible dans notre cas) et transmise par l'échantillon.

Ces mesures ont été effectuées dans l'infrarouge proche et moyen, ainsi que dans l'UV proche et le visible. Nous verrons au cours de ce chapitre que ces mesures fournissent de nombreuses informations, notamment sur le type de matériau produit, sa structure, l'épaisseur de

l'échantillon, ... Typiquement, l'absorption d'un solide dans l'UV-visible correspond aux transitions électroniques de celui-ci, alors que l'infrarouge moyen présente des bandes d'absorption résultant des vibrations des liaisons entre les atomes.

La variable obtenue grâce à ces mesures est la *transmittance*  $T$  en fonction de la longueur d'onde  $\lambda$  (ou du nombre d'onde  $\sigma = 1/\lambda$ ). Elle correspond au rapport des intensités mesurées après traversée de l'échantillon ( $I_{ech}$ , échantillon = a-C:H + substrat) et d'un substrat propre, sans film d'a-C:H ( $I_{sub}$ ). Cela permet de s'affranchir de la réponse de l'instrument utilisé et de la transmission du substrat qui porte le film d'a-C:H produit.

$$T(\lambda) = \frac{I_{ech}(\lambda)}{I_{sub}(\lambda)} \quad (6.1)$$

La *profondeur optique*  $\tau$  (sans unité, parfois appelée *absorbance*), le *coefficient d'absorption*  $\alpha$  (en  $\text{cm}^{-1}$ ), et la *section efficace d'absorption*  $\sigma$  (en  $\text{cm}^2$ ) sont définis par :

$$T(\lambda) = \exp(-\tau) = \exp(-\alpha H) = \exp(-\sigma n H) = \exp(-\sigma N) \quad (6.2)$$

où  $H$  désigne l'épaisseur du film d'a-C:H (la formule ci-dessus est donnée dans le cas d'une incidence normale),  $n$  est la concentration volumique des groupements ou liaisons responsables de l'absorption (en  $\text{cm}^{-3}$ ), et  $N$  est la densité de colonne (en  $\text{cm}^{-2}$ ). Le coefficient d'absorption  $\alpha$  est lié à la valeur de la partie imaginaire  $\kappa$  de l'indice complexe du matériau par la relation suivante :

$$\alpha(\lambda) = \frac{4\pi}{\lambda} \kappa(\lambda) \quad (6.3)$$

## 6.2 Spectroscopie UV-visible

### 6.2.1 Montage expérimental

Les spectres de transmission UV-visible des films d'a-C:H sont mesurés à l'IAS grâce au montage expérimental représenté sur les Figures 6.1 et 6.2. Ce dispositif, mis en place au début de cette thèse, est constitué d'une lampe deutérium (AvaLight DS-DUV de la marque Avantes), d'un petit banc optique sur lequel un support peut recevoir l'échantillon, et d'un spectromètre à réseau de type Czerny-Turner (AvaSpec-2048 de la marque Avantes) mesurant la lumière transmise par l'échantillon. Entre ces éléments, le faisceau lumineux est acheminé par des fibres optiques au bout desquelles se trouvent les lentilles  $L_1$  et  $L_2$ .  $L_1$  sert à adapter l'ouverture de la fibre optique<sup>1</sup> à un faisceau collimaté sur l'échantillon, et  $L_2$  effectue le symétrique de l'autre côté du dépôt. L'échantillon et les optiques sont à l'intérieur d'une boîte sous air sec purgé pour éviter que des poussières ne s'y déposent. Le spectromètre est relié à l'ordinateur pour permettre l'acquisition par le logiciel AvaSpec. Les spectres sont obtenus entre 210 nm et 710 nm avec une résolution d'une fraction de nanomètre.

1. Les fibres optiques ont une ouverture numérique NA (*numerical aperture*, ) de 0.22 typiquement ; ce nombre correspond au sinus du demi angle au sommet du cône d'ouverture à la sortie de la fibre. Cela correspond à un angle de 12.5° environ.

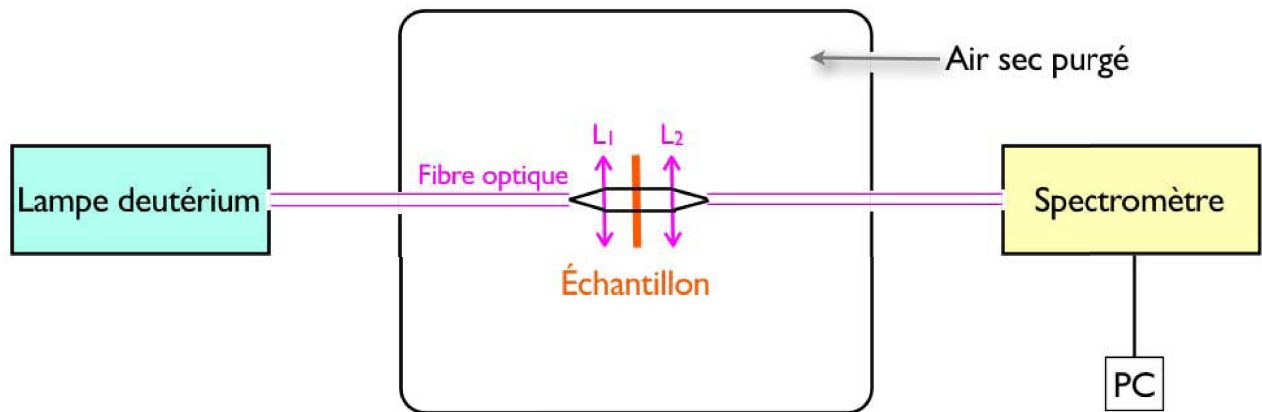


FIGURE 6.1 – Schéma du dispositif permettant la mesure des spectres UV-visibles.

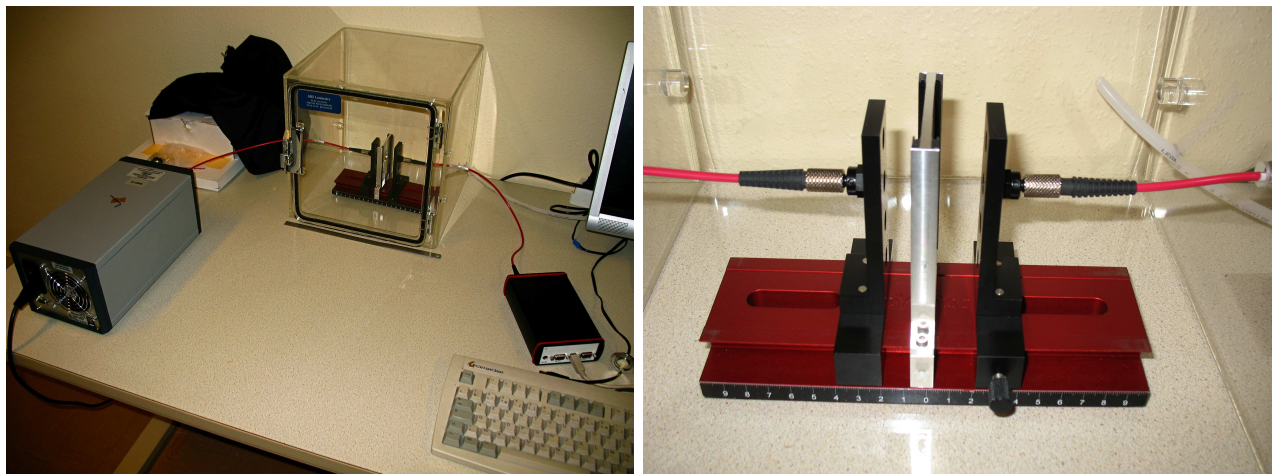


FIGURE 6.2 – Photos du dispositif permettant la mesure des spectres UV-visibles.

### 6.2.2 Transmission et coefficient d'absorption

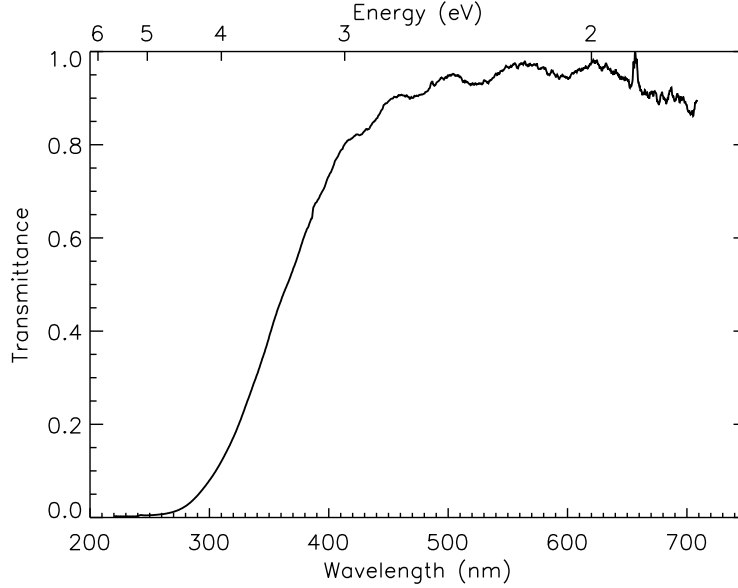


FIGURE 6.3 – Transmission UV-visible d'un échantillon d'a-C:H.

Un exemple de transmission d'un film d'a-C:H est tracé en fonction de la longueur d'onde sur la Fig. 6.3. Comme l'indiquait la couleur jaune-orange des échantillons, on voit que les a-C:H absorbent le rayonnement UV et la partie bleue du visible. On remarque aussi la présence de franges d'interférence, dues aux multiples réflexions dans l'épaisseur du film. Ce phénomène sera discuté dans le §6.3.3.

Pour comparer les différents a-C:H produits, il faut s'affranchir de leurs épaisseurs respectives, et donc obtenir la valeur de leur coefficient d'absorption  $\alpha$  (Eq. 6.2) ou de la partie imaginaire de leur indice  $\kappa$  (Eq. 6.3). La détermination de l'épaisseur des films d'a-C:H est expliquée ci-après (§6.3.3). Pour les échantillons dont l'épaisseur est trop importante pour qu'ils soient optiquement minces sur toute la gamme spectrale explorée, on extrapole la valeur de  $\alpha$  en comparant aux échantillons similaires dont l'épaisseur est plus faible. Les valeurs de  $\alpha$  et  $\kappa$  obtenues pour les différents échantillons d'a-C:H produits sont représentées en fonction de la longueur d'onde sur la Fig. 6.4. Cette figure montre bien la variété des a-C:H synthétisés se traduisant par différentes propriétés optiques.

### 6.2.3 Gap optique

Les propriétés optiques de la matière carbonée sont gouvernées par leur structure électronique. Dans le cas des a-C:H, il existe une bande d'énergie interdite, appelée gap, entre la bande de valence, formée par les états  $\sigma$  et  $\pi$ , et la bande de conduction, formée par les états  $\sigma^*$  et  $\pi^*$  (le gap entre les états  $\sigma$  et  $\sigma^*$  étant plus grand que celui entre les états  $\pi$  et  $\pi^*$ ).

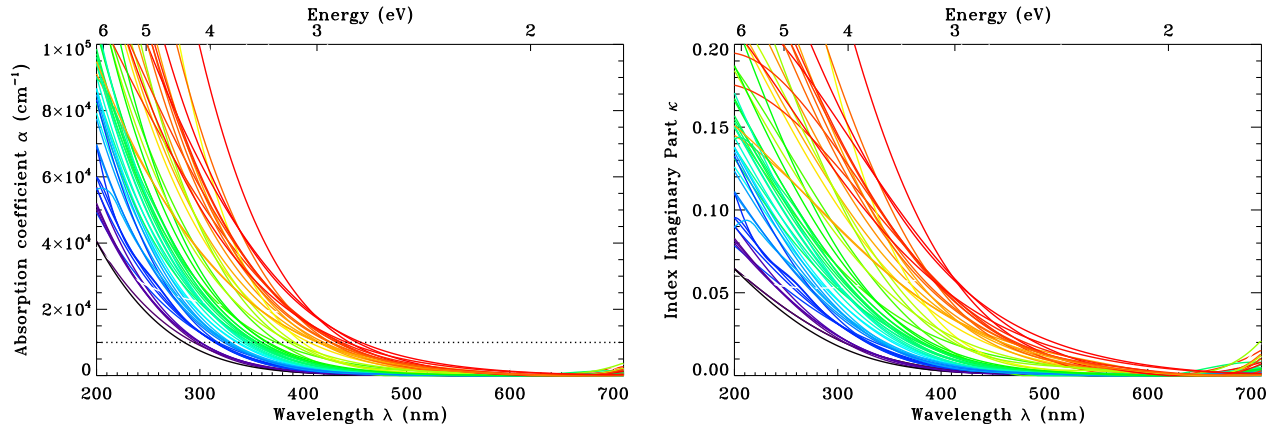


FIGURE 6.4 – **Coefficient d'absorption UV-visible de différents types d'a-C:H produits.** Les valeurs correspondants aux différents a-C:H produits sont représentées par différentes courbes, dont la couleur passe du rouge au violet lorsque le gap optique  $E_{04}$  augmente de 2.7 à 4.4 eV. *A gauche* : ce sont les valeurs du coefficient d'absorption  $\alpha(\lambda)$  qui sont tracées. La droite en pointillés correspond à  $\alpha = 10^4 \text{ cm}^{-1}$  et permet de visualiser les valeurs de  $E_{04}$ . *A droite* : les valeurs de  $\kappa$ , la partie imaginaire de l'indice des matériaux produits, sont obtenues avec la relation  $\kappa(\lambda) = \frac{\alpha(\lambda) \cdot \lambda}{4\pi}$ .

Ces deux larges bandes produisent une absorption s'étendant de l'UV au domaine visible ou infrarouge. La valeur de ce gap optique varie d'un matériau carboné à l'autre, et couvre des énergies variant de 0 eV (pour le graphite, le long d'un plan) jusqu'à 5,5 eV (pour le diamant). Nous allons donc caractériser les a-C:H synthétisés par les valeurs de leur gap optique.

Pour estimer la valeur du gap optique, la variable  $E_{04}$ , définie comme l'énergie pour laquelle le coefficient d'absorption vaut  $10^4 \text{ cm}^{-1}$ , est souvent utilisée.

$$\alpha(E_{04}) = 10^4 \text{ cm}^{-1} \quad (6.4)$$

La Fig. 6.4 de gauche permet de visualiser les valeurs de  $E_{04}$  des différents a-C:H (énergie de l'intersection des courbe avec la droite en pointillés), situées entre 2.7 et 4.4 eV.

Le gap optique des a-C:H est parfois estimé par la valeur du gap de Tauc  $E_{\text{Tauc}}$ . La quantité  $\sqrt{\alpha E}$  est proportionnelle à la différence d'énergie  $E - E_{\text{Tauc}}$  (valable pour  $\alpha > 10^4 \text{ cm}^{-1}$ , donc pour  $E > E_{04}$ ).  $E_{\text{Tauc}}$  est donc obtenu en traçant  $\sqrt{\alpha E}$  en fonction de l'énergie  $E$  (cf. Fig. 6.5)

Ces deux méthodes pour déterminer le gap optique fournissent des valeurs légèrement différentes. Il a été observé que les valeurs de  $E_{04}$  excèdent celles de  $E_{\text{Tauc}}$  par une énergie valant environ 0.6 eV (e.g. [Silva *et al.* 1996]). Nous avons déterminé les valeurs de  $E_{04}$  et de  $E_{\text{Tauc}}$  pour chacun des échantillons produits. Les a-C:H synthétisés ont des valeurs de  $E_{\text{Tauc}}$  entre 2.0 et 3.1 eV. Les valeurs obtenues sont tracées sur la Fig. 6.6, en fonction de  $E_{04}$ . On observe que la relation  $E_{\text{Tauc}} = E_{04} - 0.6 \text{ eV}$  est vérifiée par une partie de nos échantillons ( $E_{04} < 3.2 \text{ eV}$  ou  $E_{\text{Tauc}} < 2.6 \text{ eV}$ ), mais n'est plus valable pour les plus hauts gaps.

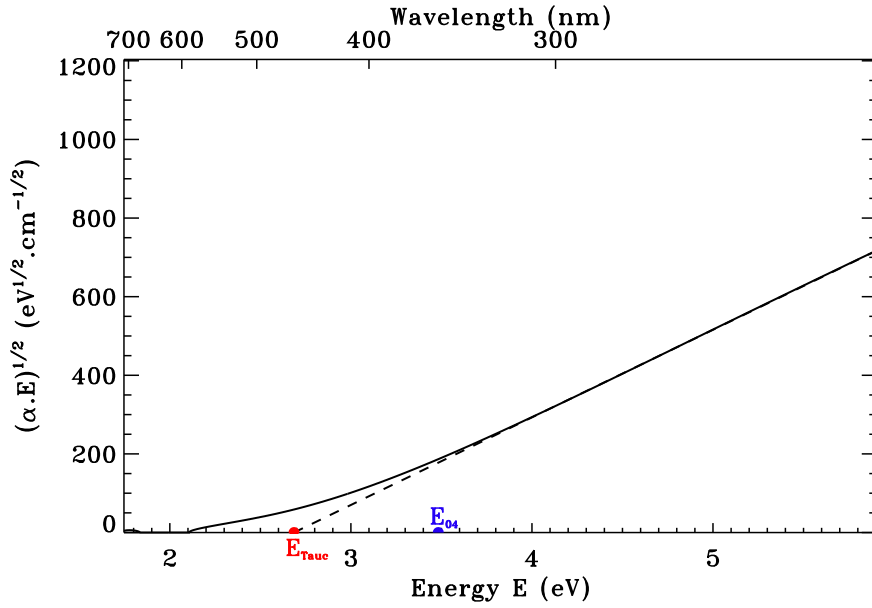


FIGURE 6.5 – **Détermination du gap de Tauc  $E_{\text{Tauc}}$ .** Le gap optique de Tauc est défini comme l'énergie d'intersection de l'axe des abscisses avec le prolongement de la droite ajustant les valeurs de  $\sqrt{\alpha E}$  pour  $\alpha > 10^4 \text{ cm}^{-1}$  (point rouge). La valeur de  $E_{04}$  correspondante est indiquée par le point bleu. L'échantillon représenté est celui dont la transmission UV-visible est tracée sur la Fig. 6.3.

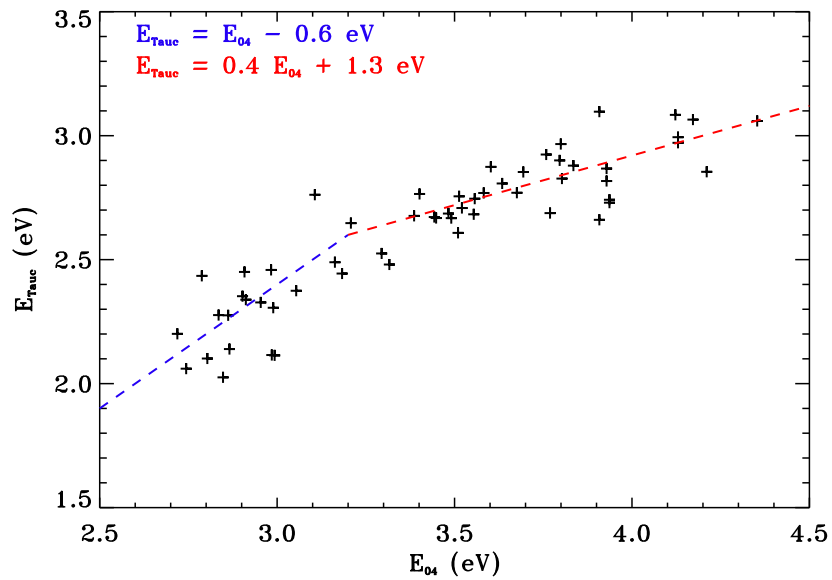


FIGURE 6.6 – **Valeurs de  $E_{\text{Tauc}}$  en fonction de celles de  $E_{04}$  pour les a-C:H produits.** Chaque croix correspond à un échantillon différent.

Dans la suite du manuscrit, nous utiliserons les valeurs de  $E_{04}$  comme valeurs du gap optique.

## 6.3 Spectroscopie infrarouge

### 6.3.1 Spectromètre infrarouge à transformée de Fourier

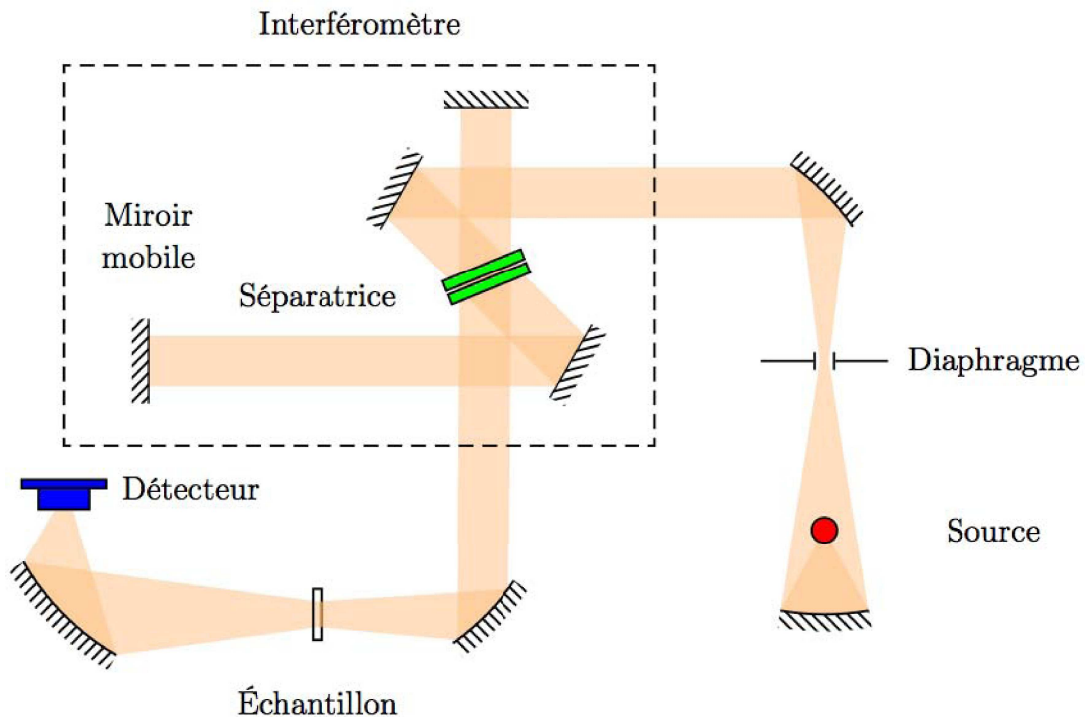


FIGURE 6.7 – **Schéma d'un spectromètre infrarouge FTIR**, basé sur la configuration adoptée pour le Vertex 80v de Bruker. Figure réalisée par Y. Carpentier

Les spectres infrarouges ont été mesurés à l'IAS grâce à un spectromètre IR à transformée de Fourier (Bruker Vertex 80V ou IFS66V). Le principe du spectromètre IR à transformée de Fourier (FTIR, *Fourier Transform Infrared spectrometer*) est schématisé sur la figure 6.7. La source infrarouge est une source Globar (barreau de carbure de silicium (SiC) chauffé entre 1000 et 1600°C constituant un corps noir dont l'émission est maximale pour  $5300\text{ cm}^{-1}$  environ, “glow bar”). Le rayonnement traversant l'échantillon est modulé par un interféromètre de Michelson et analysé par un détecteur MCT (Mercure Cadmium Tellure) afin d'obtenir son spectre de transmission. L'interféromètre module le signal au moyen d'une lame séparatrice (en KBr) qui divise l'onde incidente et envoie chacun des deux faisceaux vers un miroir ; l'un est fixe et l'autre est mobile. Lors de l'acquisition du spectre, ce miroir mobile se déplace régulièrement, conduisant, après superposition de ces deux ondes, à une figure d'interférence qui est enregistrée



par le détecteur en fonction de la différence de marche. Le spectre est obtenu par la transformée de Fourier de l'interférogramme. L'avantage majeur de cette technique est que l'ensemble des longueurs d'onde est étudié simultanément, ce qui conduit à un gain de temps important et permet l'acquisition de plusieurs spectres (128 pour nos mesures) pour augmenter le rapport signal/bruit du spectre final.

Le spectromètre fonctionne sous vide (pression de l'ordre du mbar) afin d'éviter la mesure d'absorption de composants de l'air tels que l'eau ou le dioxyde de carbone par exemple. Les spectres sont acquis, grâce au logiciel OPUS (Bruker), entre  $7500$  et  $400\text{ cm}^{-1}$  (lorsqu'un substrat en KBr est utilisé) avec une résolution de  $2\text{ cm}^{-1}$ .

### 6.3.2 Spectres

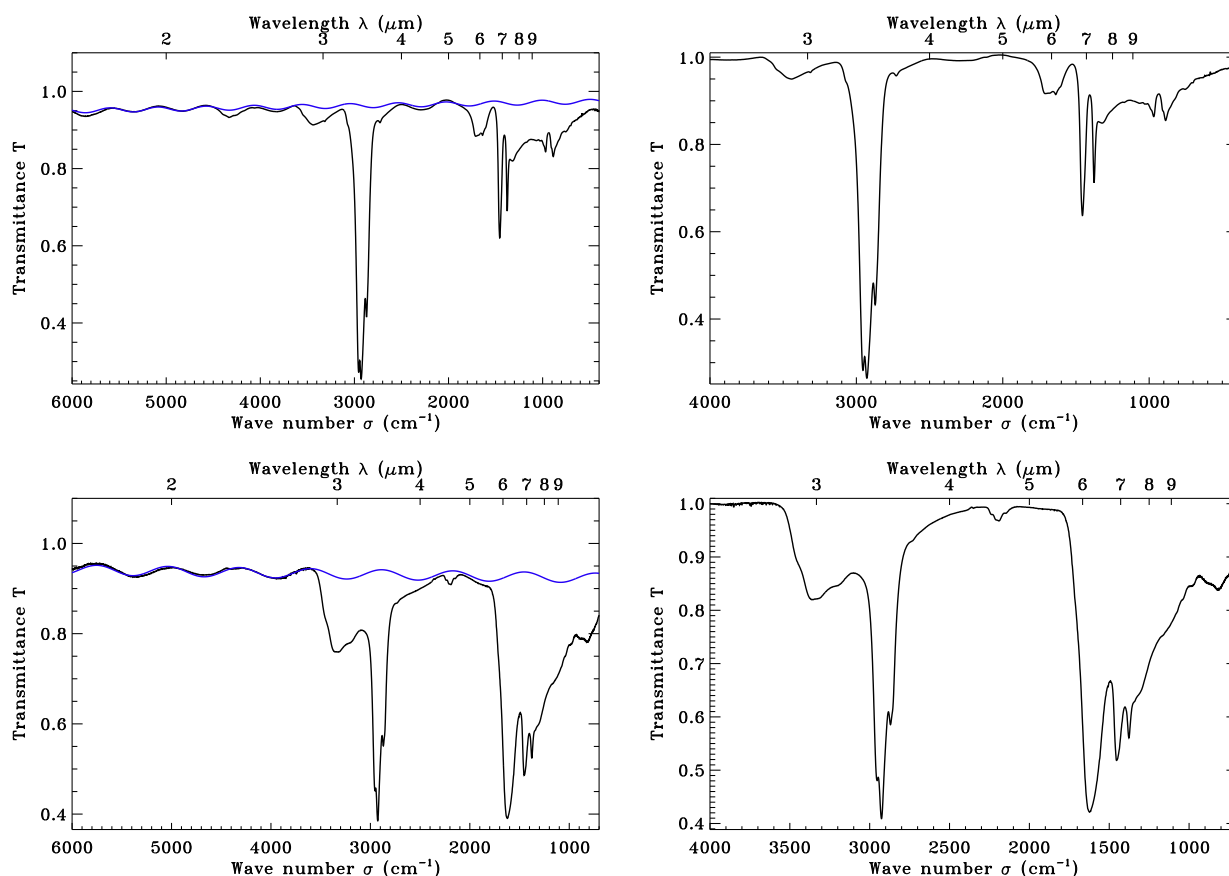


FIGURE 6.8 – Spectre de transmission IR d'a-C:H 1 et 2, avec et sans les franges. A gauche, les spectres mesurés sont en noir, et les franges d'interférences correspondantes sont en bleu. A droite, les franges ont été corrigées en divisant le spectre par la courbe bleue. Les spectres d'un a-C:H 1 et d'un a-C:H 2 sont tracés respectivement en haut et en bas.

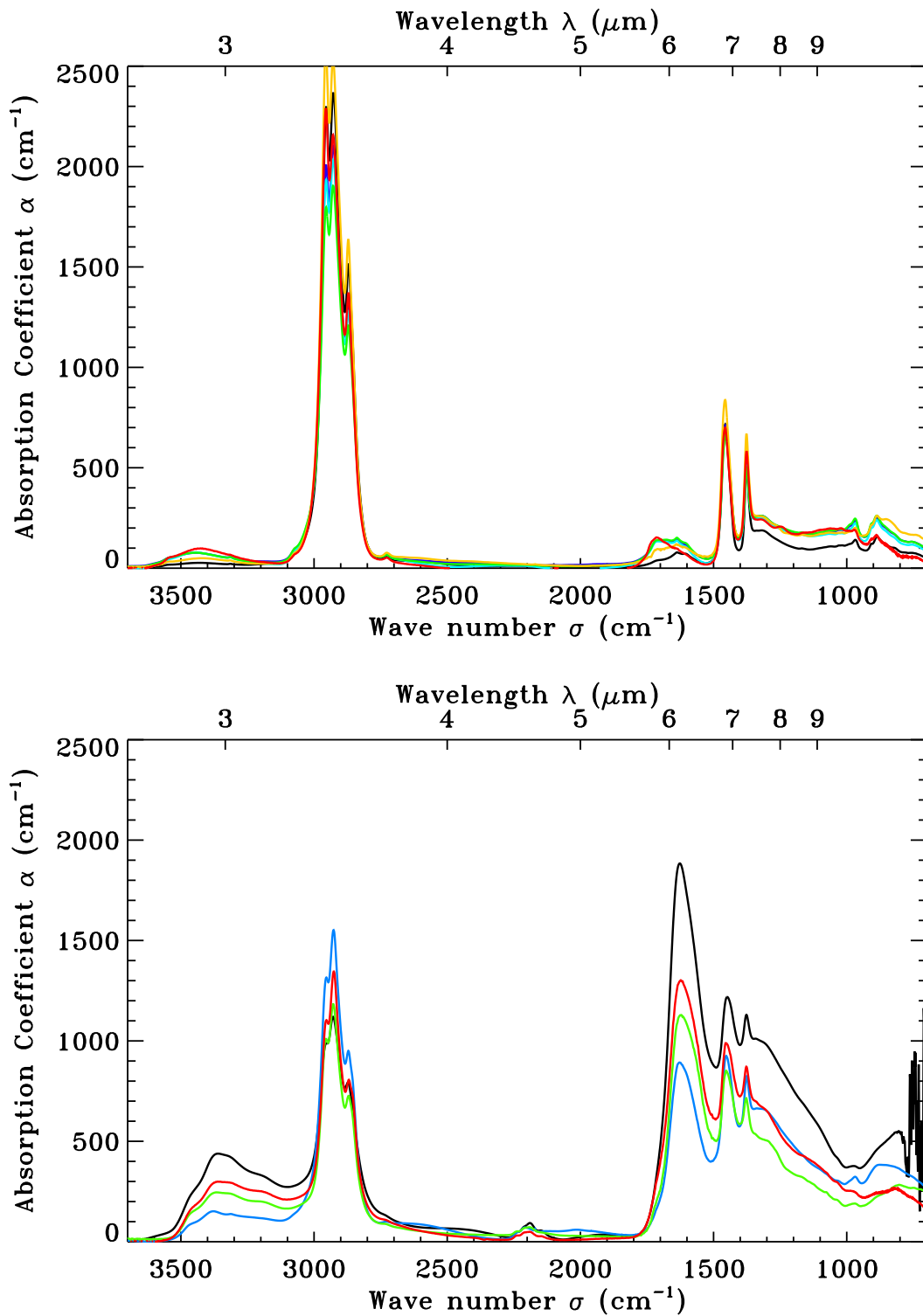


FIGURE 6.9 – Coefficient d'absorption infrarouge de différents a-C:H. Les a-C:H 1 sont en haut, et les a-C:H 2 en bas. Les différentes courbes correspondent à différents échantillons de chaque type.

Les spectres infrarouges d'a-C:H (a-C:H 1 et a-C:H 2) sont représentés sur la Fig. 6.8. Ces spectres présentent des bandes d'absorption, caractéristiques de la structure du matériau, et des franges d'interférence (ajustées par les courbes bleues) dues aux réflexions dans l'épaisseur du film. Sur les figures de droite, les spectres ont été corrigés de leurs franges.

Pour pouvoir comparer les différents a-C:H, on trace sur la Fig. 6.9 les valeurs du coefficient d'absorption IR de plusieurs échantillons d'a-C:H. Les a-C:H de type 1 (représentés en haut) sont assez semblables d'un échantillon à l'autre, alors que les a-C:H 2 produits (en bas) présentent de plus fortes variations. On remarque notamment que la valeur de  $\alpha$  de la bande à  $3.4 \mu\text{m}$  n'est pas constante comme le montre la Figure 6.10. Il apparaît que le coefficient d'absorption de la bande à  $3.4 \mu\text{m}$  diminue lorsque la valeur de  $E_{04}$  décroît (sur la figure 6.10, les couleurs correspondent aux valeurs de  $E_{04}$ , 2.7 eV en rouge, et 4.4 eV en violet). La figure de droite montre que la forme de la bande change aussi avec le gap optique : elle devient plus "triangulaire" lorsque  $E_{04}$  diminue, traduisant une augmentation du rapport  $\text{CH}_2/\text{CH}_3$ , visible au travers du rapport des modes à  $2955 \text{ cm}^{-1}$  ( $\text{CH}_3$ ) et  $2925 \text{ cm}^{-1}$  ( $\text{CH}_2$ ).

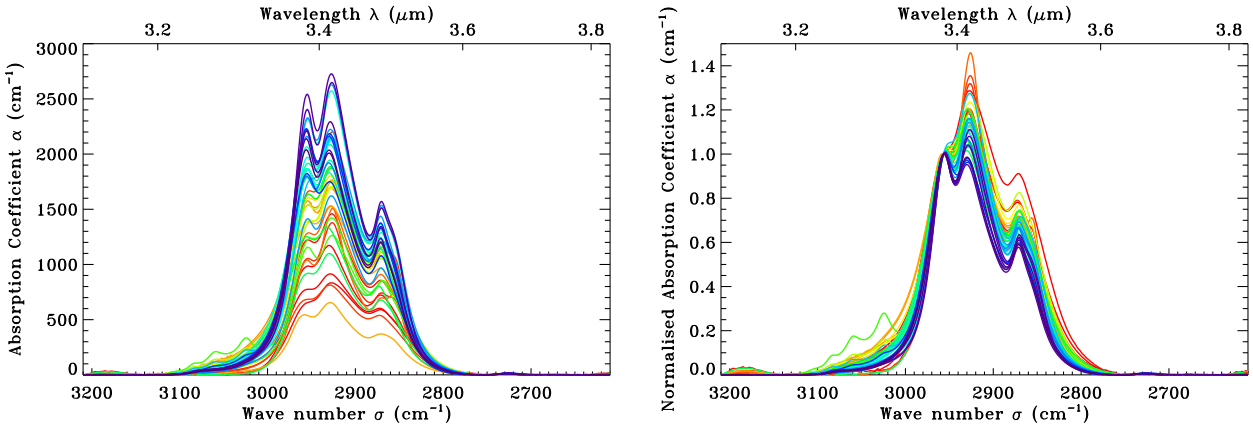


FIGURE 6.10 – Coefficient d'absorption de la bande à  $3.4 \mu\text{m}$  des a-C:H produits. Comme pour la Fig. 6.4, les couleurs correspondent à la valeur de  $E_{04}$  (les gap les plus bas, autour de 2.7 eV, sont en rouge, et ceux proche de 4.4 eV sont en violet). A gauche, les valeurs de  $\alpha$  peuvent être comparées pour les différents a-C:H. On observe que le coefficient d'absorption augmente avec  $E_{04}$ . A droite, pour permettre de visualiser le changement de structure de la bande avec  $E_{04}$ , c'est le coefficient d'absorption normalisé à  $2955 \text{ cm}^{-1}$  qui est tracé.

La Figure 6.11 montre une comparaison des spectres IR de différents a-C:H produits (a-C:H 1) avec des observations des a-C:H du milieu interstellaire diffus de la Voie Lactée (en haut, vers la source IRS7 du centre galactique) [Dartois *et al.* 2004b], ou d'une galaxie externe (en bas, vers IRAS 08572+3915) [Dartois *et al.* 2007]. La large bande observée autour de  $1600\text{--}1700 \text{ cm}^{-1}$  vers le centre galactique est majoritairement due à une contribution des nuages denses le long de la ligne de visée (déformation O-H de la glace d'eau). La grande similarité du profil des bandes à  $3.4 \mu\text{m}$ , mais aussi à  $6.9$  et  $7.3 \mu\text{m}$ , démontre que ces carbones amorphes hydrogénés

produits par plasma à l'IAS sont d'excellents analogues de cette composante de la poussière interstellaire.

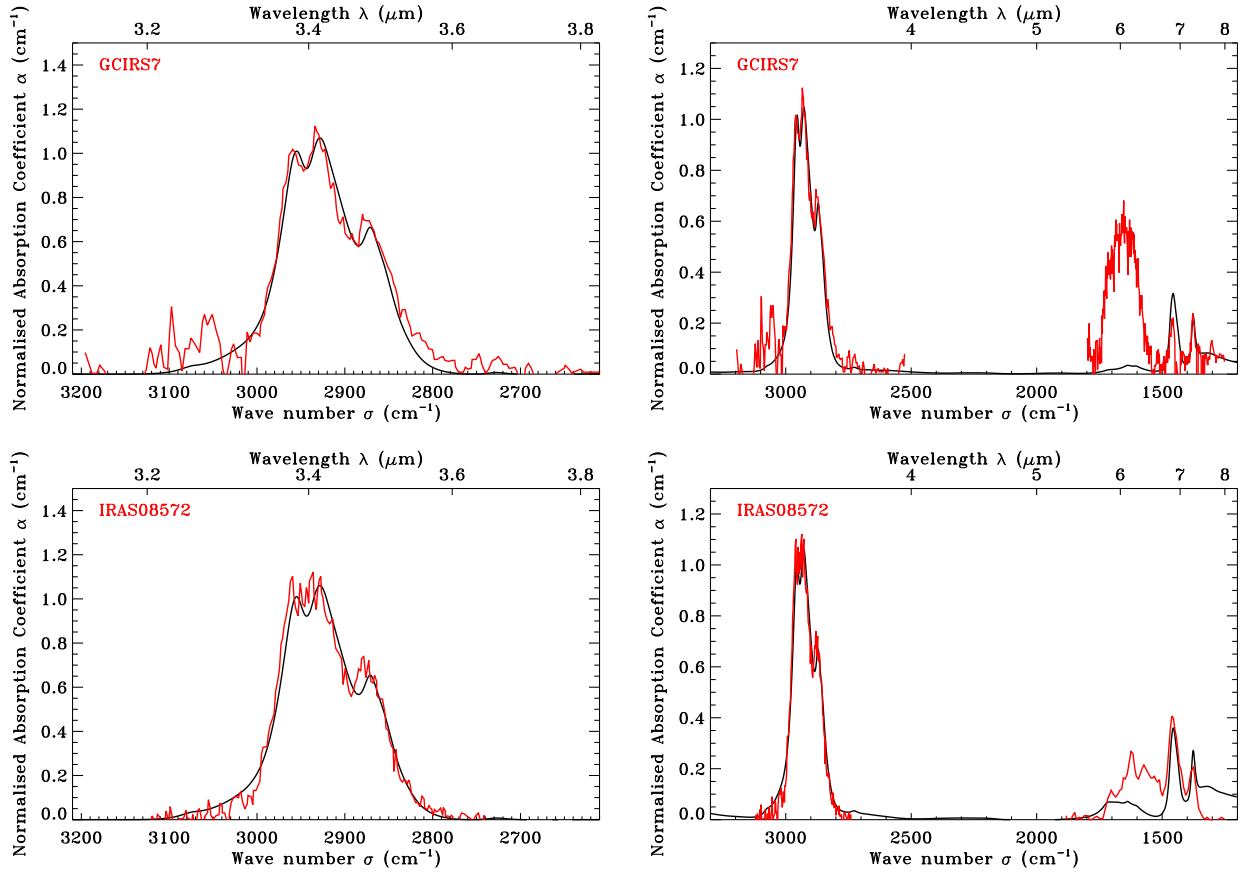


FIGURE 6.11 – Comparaison des spectres IR des a-C:H produits avec ceux observés dans le MIS diffus. Les spectres des a-C:H produits en laboratoire sont en noirs. Les bandes des liaisons C-H observées dans le milieu interstellaire diffus sont tracées en rouge. En haut, c'est la ligne de visée vers la source IRS7 du centre galactique qui est représentée [Dartois *et al.* 2004b], alors qu'en bas, les observations sont celles en direction de la galaxie IRAS 08572+3915 [Dartois *et al.* 2007]. Les profondeurs optiques observées dans le MIS sont normalisées à la valeur du coefficient d'absorption des a-C:H à 2955 cm<sup>-1</sup>.

### 6.3.2.1 Bandes d'absorption

Les différentes bandes d'absorption IR que l'on mesure nous donnent accès à la structure des a-C:H produits. En effet, ces bandes sont caractéristiques des différents modes de vibration des liaisons présentes dans le matériau. La position de ces bandes et les liaisons auxquelles elles correspondent sont indiquées dans le Tableau 6.1 [Ristein *et al.* 1998, Dartois *et al.* 2004b, Dartois *et al.* 2005]. Typiquement, les modes d'élongation des liaisons C-H se situent entre 2800

$\sigma$ (cm <sup>-1</sup> )	$\lambda$ ( $\mu$ m)	Mode de vibration	Liaisons	hybridation du C
3 300	3.0	élongation	CH acétylénique : $\equiv$ C-H	sp <sup>1</sup>
3 078	3.25	élongation asym.	CH oléfinique : CH <sub>2</sub>	sp <sup>2</sup>
3 050	3.28	élongation	CH aromatique : CH	sp <sup>2</sup>
3 010	3.32	élongation	CH oléfinique : CH	sp <sup>2</sup>
2 985	3.35	élongation sym.	CH oléfinique : CH <sub>2</sub>	sp <sup>2</sup>
2 955	3.38	élongation asym.	CH aliphatique : CH <sub>3</sub>	sp <sup>3</sup>
2 925	3.42	élongation asym.	CH aliphatique : CH <sub>2</sub>	sp <sup>3</sup>
2 900	3.45	résonance de Fermi <sup>a</sup> ou : élongation	CH aliphatique : CH <sub>2</sub> CH aliphatique : CH	sp <sup>3</sup> sp <sup>3</sup>
2 871	3.48	élongation sym.	CH aliphatique : CH <sub>3</sub>	sp <sup>3</sup>
2 850	3.50	élongation sym.	CH aliphatique : CH <sub>2</sub>	sp <sup>3</sup>
2 100	4.7	élongation	CC acétylénique : C $\equiv$ C	sp <sup>1</sup>
1 900	5.2	élongation	CC cumulénique : C=C=C	sp <sup>2</sup>
1 640	6.1	élongation	CC oléfinique : C=C	sp <sup>2</sup>
1 600	6.2	élongation	CC aromatique : C=C	sp <sup>2</sup>
1 470	6.80	pliage asym.	CH aliphatique : CH <sub>3</sub>	sp <sup>3</sup>
1 450	6.89	pliage	CH aliphatique : CH <sub>2</sub>	sp <sup>3</sup>
1 430	7.00	pliage	CH aromatique : CH	sp <sup>2</sup>
1 415	7.06	pliage	CH oléfinique : CH <sub>2</sub>	sp <sup>2</sup>
1 376	7.27	pliage sym.	CH aliphatique : CH <sub>3</sub>	sp <sup>3</sup>
985	10.1	pliage hors-plan	CH oléfinique : -CH=CH <sub>2</sub>	sp <sup>2</sup>
970	10.3	pliage hors-plan	CH oléfinique : -CH=CH-	sp <sup>2</sup>
910	10.9	pliage hors-plan	CH oléfinique : -CH=CH <sub>2</sub>	sp <sup>2</sup>
890	11.3	pliage hors-plan	CH aromatique : CH (solo)	sp <sup>2</sup>

<sup>a</sup> Cette résonance de Fermi serait due au fait que le deuxième harmonique du mode de pliage des liaisons C-H des groupements méthylène (CH<sub>2</sub>) tombe près du mode d'élongation asymétrique des CH<sub>2</sub> ( $\sim 2925$  cm<sup>-1</sup>) [Dartois *et al.* 2005].

TABLE 6.1 – Principaux modes de vibration infrarouges des a-C:H.

et  $3100\text{ cm}^{-1}$ , et les modes de pliage correspondants sont entre  $1300$  et  $1500\text{ cm}^{-1}$ . La région autour de  $1600\text{ cm}^{-1}$  correspond aux élongations des liaisons  $\text{C}=\text{C}$ , et les modes d'élongation des liaisons du squelette carboné ( $\text{C}-\text{C}$  et  $\text{C}=\text{C}$ ) sont entre  $1000$  et  $1500\text{ cm}^{-1}$ . La région des nombres d'onde inférieurs à  $1000\text{ cm}^{-1}$  est celle des pliages hors-plan des liaisons  $\text{C}-\text{H}$ . De plus, on observe parfois de faibles bandes d'absorption autour de  $1710\text{ cm}^{-1}$  et  $3400\text{--}3500\text{ cm}^{-1}$ , respectivement dues aux élongations des liaisons  $\text{C}=\text{O}$  et  $\text{O}-\text{H}$ . Cette faible contamination par des atomes d'oxygène, parfois observée, peut avoir lieu lors de la production des échantillons ou lors de leur remise à l'air pour les analyses *ex situ*.

### 6.3.3 Franges d'interférence

Des franges d'interférences apparaissent dans le spectre de transmission du dépôt : hors des bandes d'absorption, l'intensité oscille autour d'une valeur moyenne. Ces interférences sont le résultat de réflexions multiples aux interfaces du film déposé sur le substrat. Elles permettent de déduire certaines propriétés du film produit. Nous allons en effet voir qu'elles dépendent de l'indice et de l'épaisseur du dépôt.

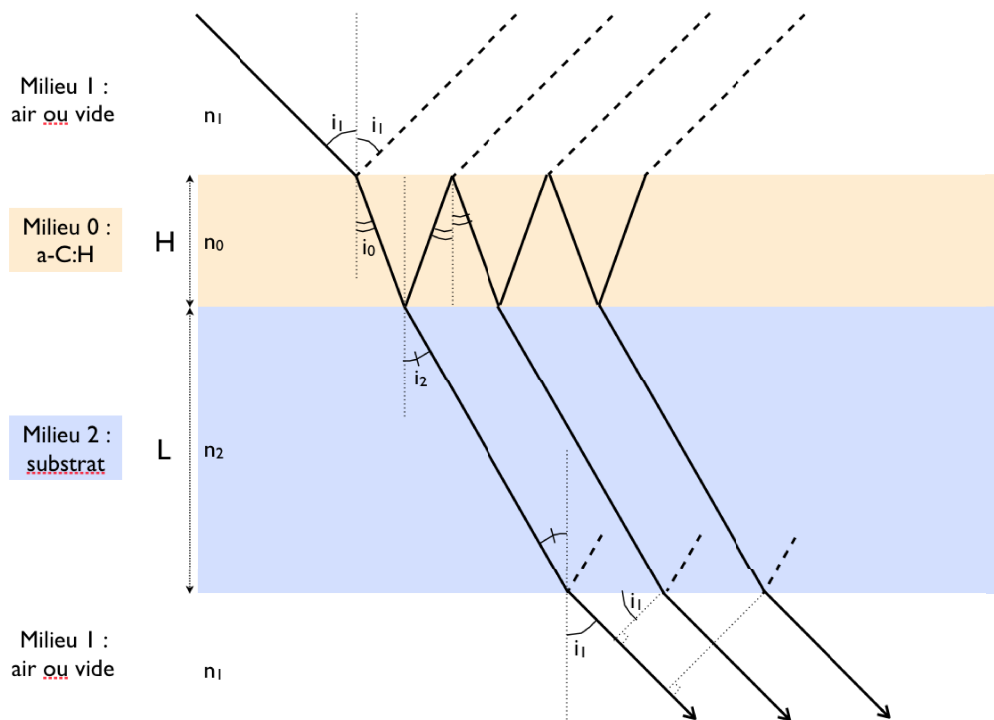


FIGURE 6.12 – Schéma des multiples réflexions aux interfaces du film déposé sur un substrat

Le schéma des multiples réflexions ayant lieu dans le dépôt lors d'une mesure de transmission est présenté Fig. 6.12. Dans ce paragraphe, les notations utilisées sont les suivantes (le terme échantillon désigne l'ensemble du film et du substrat) :

**Milieu 0** milieu du film étudié

**Milieu 1** milieu environnant dans lequel se trouve le film

**Milieu 2** milieu du substrat sur lequel le film est déposé

$n_i$  partie réelle de l'indice de réfraction du milieu i

$k_i$  partie imaginaire de l'indice de réfraction du milieu i

$i_i$  angle d'incidence ou de réfraction dans le milieu i

$t_{ij}$  coefficient de transmission du milieu i vers le milieu j

$r_{ij}$  coefficient de réflexion à l'interface milieu i / milieu j

$H$  épaisseur du film

$L$  épaisseur du substrat

$\delta$  différence de marche

$Y_0$  onde incidente sur l'échantillon

$Y$  onde transmise par l'échantillon

$t_{ech}$  coef. de transmission de l'échantillon

$t_{sub}$  coef. de transmission du substrat.

La loi de Snell-Descartes concernant la réfraction nous donne :

$$n_1 \sin i_1 = n_0 \sin i_0 = n_2 \sin i_2 \quad (6.5)$$

Calculons la différence de chemin optique  $\delta$  entre un rayon ayant directement traversé le dépôt et un rayon ayant traversé celui-ci après avoir subi une réflexion sur chacune des faces du dépôt (cf. figure 6.12) :

$$\delta = n_0 \cdot 2 \frac{H}{\cos i_0} - n_1 l \sin i_1 \quad \text{avec : } l = 2 H \tan i_0 \quad (6.6)$$

$$\delta = \frac{2 n_0 H}{\cos i_0} (1 - \sin^2 i_0) \quad (6.7)$$

$$\delta = 2 n_0 H \cos i_0 \quad (6.8)$$

À cause de ces réflexions multiples sur les faces du film déposé (que l'on assimile à une lame à faces parallèles), des franges d'interférence<sup>2</sup> apparaissent dans le spectre de transmission de ce dépôt. Ces franges atteindront un maximum pour des interférences constructives, c'est-à-dire pour :

$$\delta = m \lambda \quad m \in \mathbb{Z} \quad (6.9)$$

Donc, la période de ces franges en nombre d'onde  $\Delta\sigma$  est donnée par l'équation 6.10. On obtient ainsi une relation reliant l'épaisseur  $H$  et l'indice  $n_0$  du film à partir de la mesure de l'interfrange  $\Delta\sigma$  dans le spectre transmis par le dépôt (Eq. 6.11 si la mesure est faite en incidence normale).

$$\Delta\sigma = \frac{m+1}{\delta} - \frac{m}{\delta} = \frac{1}{\delta} = \frac{1}{2 n_0 H \cos i_0} \quad (6.10)$$

$$H = \frac{1}{2 n_0 \Delta\sigma} \quad (6.11)$$

*Remarque :* On peut alors remarquer que l'épaisseur du substrat devrait aussi induire des franges d'interférence dans le spectre. C'est le cas mais ces franges sont à haute fréquence.

---

2. similaires à celles obtenues avec un interféromètre Fabry-Pérot



En effet, l'épaisseur du substrat est bien plus importante que celle du dépôt. Par exemple, les fenêtres de quartz que l'on utilise ont une épaisseur  $L = 1.5$  mm et leur indice vaut  $n_2 \approx 1.52$ . La formule 6.10 nous indique :  $\Delta\sigma_{substrat} \approx 2 \text{ cm}^{-1}$  (limite de résolution des spectres mesurés). De plus, la traversée de cette épaisseur plus importante implique la rencontre plus probable d'inhomogénéités conduisant à des décalages de différence de marche et donc à une perte de cohérence : les franges d'interférence sont peu contrastées.

De plus, nous allons montrer que l'amplitude des franges nous renseigne sur l'indice optique de la couche déposée. La somme de toutes ces multiples réflexions sur les faces du film aboutit à :

$$Y = Y_0 \cdot t_{10} t_{02} t_{21} e^{-\frac{2\pi}{\lambda}(\frac{k_0 H}{\cos i_0} + \frac{k_2 L}{\cos i_2})} e^{i\frac{2\pi}{\lambda}(\frac{n_0 H}{\cos i_0} + \frac{n_2 L}{\cos i_2})} \sum_{m=0}^{\infty} \left( r_{02} r_{01} e^{-\frac{4\pi}{\lambda} \frac{k_0 H}{\cos i_0}} e^{i\frac{2\pi\delta}{\lambda}} \right)^m \quad (6.12)$$

$$Y = Y_0 \cdot \frac{t_{10} t_{02} t_{21} e^{-\frac{2\pi}{\lambda}(\frac{k_0 H}{\cos i_0} + \frac{k_2 L}{\cos i_2})} e^{i\frac{2\pi}{\lambda}(\frac{n_0 H}{\cos i_0} + \frac{n_2 L}{\cos i_2})}}{1 - r_{02} r_{01} e^{-\frac{4\pi}{\lambda} \frac{k_0 H}{\cos i_0}} e^{i\frac{2\pi\delta}{\lambda}}} = Y_0 \cdot t_{ech}(\lambda). \quad (6.13)$$

La transmittance  $T_{ech}(\lambda)$  est le rapport de l'intensité transmise  $I$  sur l'intensité incidente  $I_0$ .

$$T_{ech}(\lambda) = \frac{I}{I_0} = \left| \frac{Y}{Y_0} \right|^2 = |t_{ech}(\lambda)|^2 \quad (6.14)$$

$$T_{ech}(\lambda) = \frac{|t_{10}|^2 |t_{02}|^2 |t_{21}|^2 e^{-\frac{4\pi}{\lambda}(\frac{k_0 H}{\cos i_0} + \frac{k_2 L}{\cos i_2})}}{1 + R^2 - 2R \cos \frac{2\pi\delta}{\lambda}} \quad (6.15)$$

$$\text{Avec : } R = |r_{02}| |r_{01}| e^{-\frac{4\pi}{\lambda} \frac{k_0 H}{\cos i_0}} \quad (6.16)$$

La transmission de l'échantillon présente donc des franges d'interférence oscillant autour de la valeur moyenne  $\langle T_{ech} \rangle$ , et d'amplitude crête-à-crête  $\Delta T_{ech}$ .

$$\langle T_{ech} \rangle = \frac{|t_{10}|^2 |t_{02}|^2 |t_{21}|^2 e^{-\frac{4\pi}{\lambda}(\frac{k_0 H}{\cos i_0} + \frac{k_2 L}{\cos i_2})}}{1 + R^2} \quad (6.17)$$

$$\Delta T_{ech} = |t_{10}|^2 |t_{02}|^2 |t_{21}|^2 e^{-\frac{4\pi}{\lambda}(\frac{k_0 H}{\cos i_0} + \frac{k_2 L}{\cos i_2})} \left[ \frac{1}{(1 - R)^2} - \frac{1}{(1 + R)^2} \right] \quad (6.18)$$

$$\Delta T_{ech} = |t_{10}|^2 |t_{02}|^2 |t_{21}|^2 e^{-\frac{4\pi}{\lambda}(\frac{k_0 H}{\cos i_0} + \frac{k_2 L}{\cos i_2})} \frac{4R}{(1 - R^2)^2} \quad (6.19)$$

De la même manière, on peut calculer la valeur moyenne de la transmission du substrat  $\langle T_{sub} \rangle$ . Comme expliqué ci-dessus, les franges dues aux réflexions dans le substrat ne sont pas visibles.

$$\langle T_{sub} \rangle = \frac{|t_{12}|^2 |t_{21}|^2 e^{-\frac{4\pi}{\lambda} \frac{k_2 L}{\cos i_2}}}{1 + |r_{21}|^4 e^{-\frac{4\pi}{\lambda} \frac{k_2 L}{\cos i_2}}} \approx T_{sub} \quad (6.20)$$

La transmission du film est obtenue par la division du spectre transmis par l'échantillon (film + substrat) par le spectre transmis par le substrat. La transmission du film est donc :

$$T(\lambda) = \frac{T_{ech}(\lambda)}{\langle T_{sub} \rangle} = \frac{|t_{10}|^2 |t_{02}|^2 e^{-\frac{4\pi}{\lambda} \frac{k_0 H}{\cos i_0}}}{|t_{12}|^2} \cdot \frac{1 + |r_{21}|^4 e^{-\frac{4\pi}{\lambda} \frac{k_2 L}{\cos i_2}}}{1 + R^2 - 2R \cos \frac{2\pi\delta}{\lambda}}. \quad (6.21)$$

L'amplitude relative des franges  $\frac{\Delta T}{\langle T \rangle}$  du spectre de transmission obtenu est donc :

$$\frac{\Delta T}{\langle T \rangle} = \frac{\Delta T_{ech}}{\langle T_{ech} \rangle} = \frac{4R(1 + R^2)}{(1 - R^2)^2} \quad (6.22)$$

Ces expressions sont reliées aux indices de réfraction des différents milieux. Les équations de Fresnel donnent les expressions des coefficients de réflexion et de transmission (rapports des amplitudes du champ des ondes incidente, réfléchie et transmise) en fonction des indices et des angles (cf. Annexe A.3). Ainsi, en *incidence normale* et pour les longueurs d'onde où le matériau n'absorbe pas<sup>3</sup>, on a :

$$t_{ij} = \frac{2n_i}{n_i + n_j} \quad (6.23)$$

$$r_{ij} = \frac{n_i - n_j}{n_i + n_j} \quad (6.24)$$

La valeur de l'amplitude relative des franges  $\frac{\Delta T}{\langle T \rangle}$  est tracée sur la figure 6.13 en fonction de l'indice de l'échantillon  $n_0$ , pour un substrat avec  $n_2 = 1.53$  (quartz), en incidence normale, pour des longueurs d'onde où les matériaux n'absorbent pas.

Par ailleurs, on pourra avoir une autre indication sur l'indice du dépôt  $n_0$  par la valeur de la transmission moyenne  $\langle T \rangle$ .

$$\langle T \rangle = \frac{\langle T_{ech} \rangle}{\langle T_{sub} \rangle} \quad (6.25)$$

$$\langle T \rangle = \frac{|t_{10}|^2 |t_{02}|^2 e^{-\frac{4\pi}{\lambda} \frac{k_0 H}{\cos i_0}}}{|t_{12}|^2} \cdot \frac{1 + |r_{21}|^4 e^{-\frac{4\pi}{\lambda} \frac{k_2 L}{\cos i_2}}}{1 + |r_{01}|^2 |r_{02}|^2 e^{-\frac{4\pi}{\lambda} \frac{k_0 H}{\cos i_0}}} \quad (6.26)$$

La valeur de la transmission moyenne  $\langle T \rangle$  est tracée sur la figure 6.14 en fonction de l'indice de l'échantillon  $n_0$ , pour un substrat avec  $n_0 = 1.53$  (quartz), en incidence normale, pour des longueurs d'onde où les matériaux n'absorbent pas.

Notamment, il est possible de déterminer si l'indice du film  $n_0$  est plus ou moins grand que l'indice du substrat  $n_2$ . En effet, dans le cas où  $n_1 < n_0 < n_2$ , la transition entre les matériaux se fera de manière plus progressive en indice avec le dépôt que sans (la transition entre  $n_1$  et  $n_2$  lors de la mesure de la fenêtre sans dépôt est plus brutale dans ce cas), et donc les pertes d'intensité par réflexions aux interfaces plus faibles que pour l'intensité transmise

---

3. sinon ce sont les indices de réfraction complexes  $\tilde{n}$  qu'il faut considérer au lieu de leur partie réelle  $n$ .

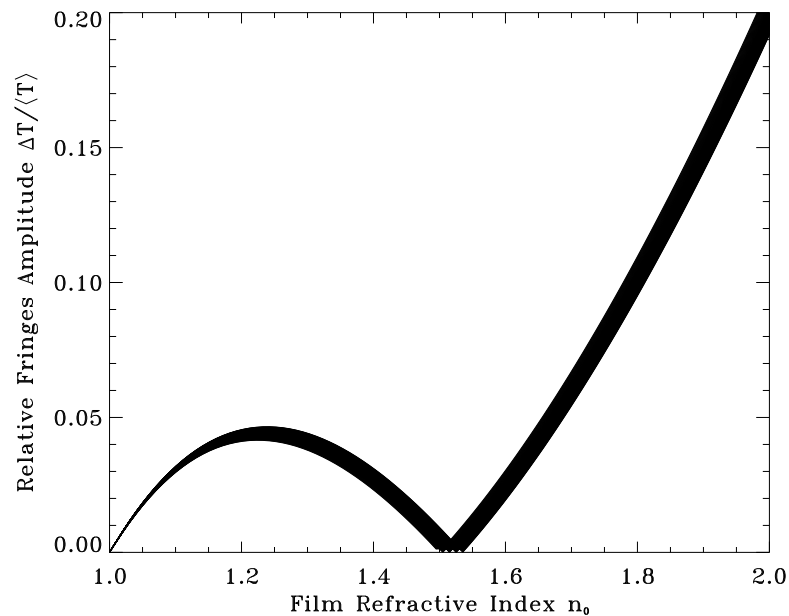


FIGURE 6.13 – **Variation de l’amplitude relative des franges d’un spectre de transmission en fonction de l’indice  $n_0$  du film.** L’amplitude des franges devient nulle si le film et le substrat ont le même indice  $n_0 = n_2$ . Le cas représenté est celui d’une incidence normale, aux longueurs d’onde où le film n’absorbe pas, pour un substrat d’indice  $n_2 = 1.52$  (substrat en quartz). L’épaisseur de la courbe correspond aux variations avec la longueur d’onde entre 1 et 3  $\mu\text{m}$  (intervalle où les franges sont mesurées), car l’indice du substrat n’est pas totalement constant avec la longueur d’onde.

par une fenêtre sans dépôt<sup>4</sup>. Donc, dans le cas  $n_0 < n_2$ , l’intensité transmise par le système dépôt+substrat divisée par celle transmise par le substrat seul (sans tenir compte des franges dues aux réflexions multiples) sera supérieure à 1. Inversement, pour  $n_0 > n_2$ , la différence d’indices sera encore plus forte et l’intensité relative observée inférieure à 1 puisque le coefficient de réflexion entre l’air et le dépôt (proportionnelle au carré de la différence  $n_0 - n_1$ ) est alors plus fort que celui entre l’air et le substrat.

*Remarque :* Dans la pratique, on observe parfois une diminution de l’amplitude des franges lorsque la longueur d’onde diminue. En effet, aux plus courtes longueurs d’onde, l’onde devient sensible aux irrégularités de l’épaisseur du film entre les différents points de la zone éclairée, on ne peut alors plus tout à fait considérer un dépôt à faces parallèles, d’épaisseur constante. Les franges sont alors le résultat de la superposition d’interférences dues aux différentes épaisseurs vues par l’onde et dont les franges sont de différentes fréquences. Les mesures de transmission idéales pour évaluer l’indice optique du matériau par cette méthode sont donc celles où les surfaces éclairées de l’échantillon sont les plus faibles, pour pouvoir considérer que le film est

4. C’est le principe d’une couche anti-reflet.

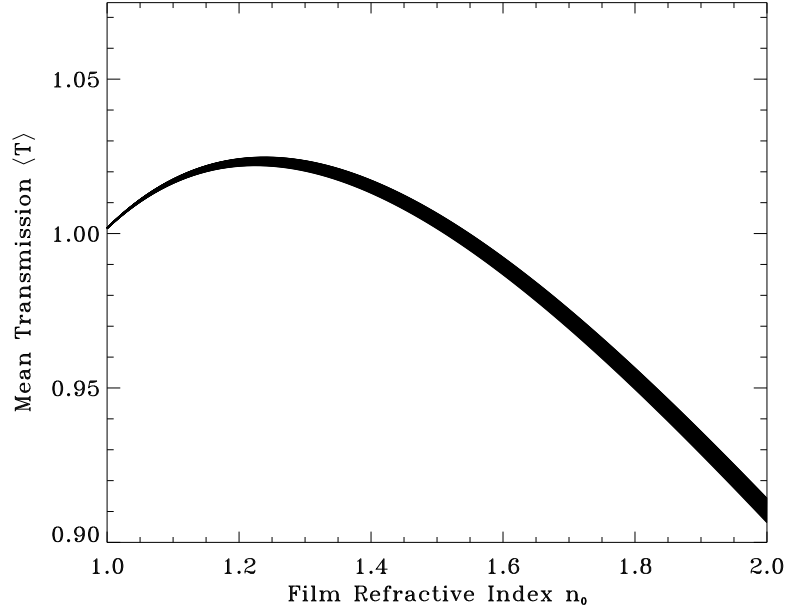


FIGURE 6.14 – **Transmission moyenne d'un film déposé sur un substrat en quartz (hors absorption) en fonction de l'indice  $n_0$  du film.** La transmission moyenne est égale à 1 si le film et le substrat ont le même indice  $n_0 = n_2$ , supérieure à 1 si  $n_0 < n_2$  (couche anti-reflet), et inférieure à 1 si  $n_0 > n_2$ . Le cas représenté est celui d'une incidence normale, aux longueurs d'onde où le film n'absorbe pas, pour un substrat d'indice  $n_2 = 1.52$  (substrat en quartz). L'épaisseur de la courbe correspond aux variations avec la longueur d'onde entre 1 et 3  $\mu\text{m}$  (intervalle où les franges sont mesurées), car l'indice du substrat n'est pas totalement constant avec la longueur d'onde.

localement plan. Les mesures IR effectuées avec un microscope sont donc les plus adaptées à ce type d'estimation.

En théorie, l'amplitude et la valeur moyenne des franges d'interférence varient conjointement lorsque l'indice du film change. Cette variation conjointe de ces deux paramètres est représentée sur la Fig. 6.15, dans le cas d'un substrat de quartz.

Finalement, les franges d'interférence présentes dans le spectre de transmission d'un film fournissent des informations importantes pour caractériser l'échantillon étudié. Connaissant les indices du milieu environnant  $n_1$  et du substrat  $n_2$ , il est possible d'évaluer l'indice  $n_0$  et l'épaisseur  $H$  du dépôt au travers de la mesure de :

- l'amplitude relative des franges d'interférence  $\frac{\Delta T}{\langle T \rangle}$  (Eq. 6.22),
- la transmission moyenne du film  $\langle T \rangle$  autour de laquelle les franges oscillent (Eq. 6.26),
- l'interfrange  $\Delta\sigma$  (Eq. 6.10).

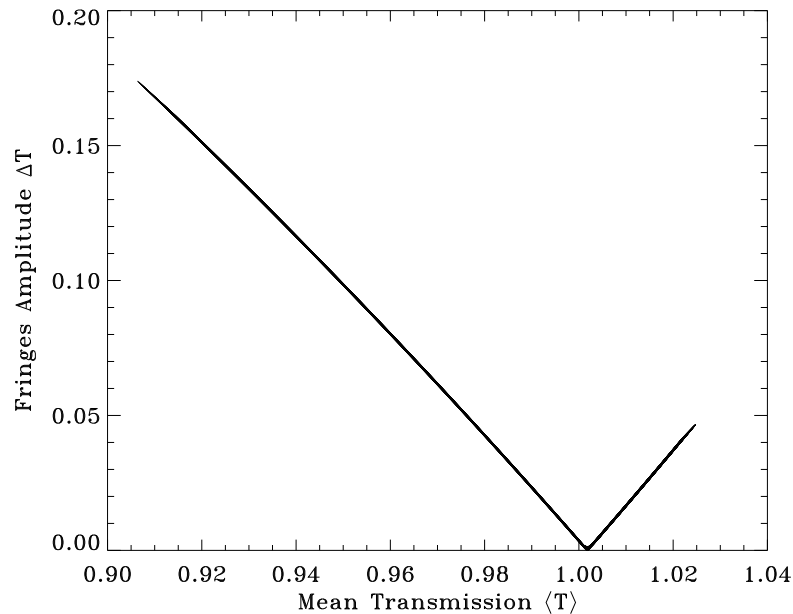


FIGURE 6.15 – Variation attendue de l’amplitude des franges en fonction de la transmission moyenne pour différents indices  $n_0$ . Le cas représenté est celui d’une incidence normale, aux longueurs d’onde où le film n’absorbe pas, pour un substrat d’indice  $n_2 = 1.52$  (substrat en quartz). L’épaisseur de la courbe correspond aux variations avec la longueur d’onde entre 1 et 3  $\mu\text{m}$  (intervalle où les franges sont mesurées), car l’indice du substrat n’est pas totalement constant avec la longueur d’onde.

Dans la pratique, les valeurs de  $\langle T \rangle$  et  $\Delta T$  déterminées à partir des franges présentes dans les spectres IR des a-C:H produits sont très variables (pour un même substrat et un même type d’a-C:H) et ne peuvent être déterminées qu’avec des incertitudes souvent importantes. On observe que les valeurs de  $\langle T \rangle$  sont systématiquement inférieure à 1 lorsque les substrats en  $\text{CaF}_2$  ou en  $\text{KCl}$  sont utilisés, indiquant un indice supérieur à 1.4 pour les a-C:H. Avec les substrats en  $\text{ZnSe}$ ,  $\langle T \rangle$  est au-dessus de 1. Les nombreux échantillons déposés sur du quartz ou du  $\text{KBr}$  présente des valeurs de  $\langle T \rangle$  majoritairement entre 0.95 et 1.03. L’analyse des valeurs de  $\langle T \rangle$  et  $\Delta T$  issues des spectres IR acquis pendant cette thèse ne permettent pas de déterminer l’indice  $n_0$  des a-C:H sur un intervalle plus restreint que  $n_0 \in [1.4, 1.8]$ . Ces valeurs ne permettent pas non plus de distinguer une différence d’indice entre les a-C:H 1 et les a-C:H 2. Le fait qu’elles ne se répartissent pas spécialement comme indiqué sur la Fig. 6.15 montre que l’analyse des franges d’interférences en IR pour déterminer l’indice de réfraction nécessiterait une série de mesures dédiées, où de nombreux échantillons déposés sur des substrats variés seraient analysés avec un microscope IR afin d’obtenir de faibles incertitudes et une bonne statistique sur les valeurs de  $\langle T \rangle$  et  $\Delta T$ . Cette étude des constantes optiques des carbones

amorphes hydrogénés reste donc à poursuivre.

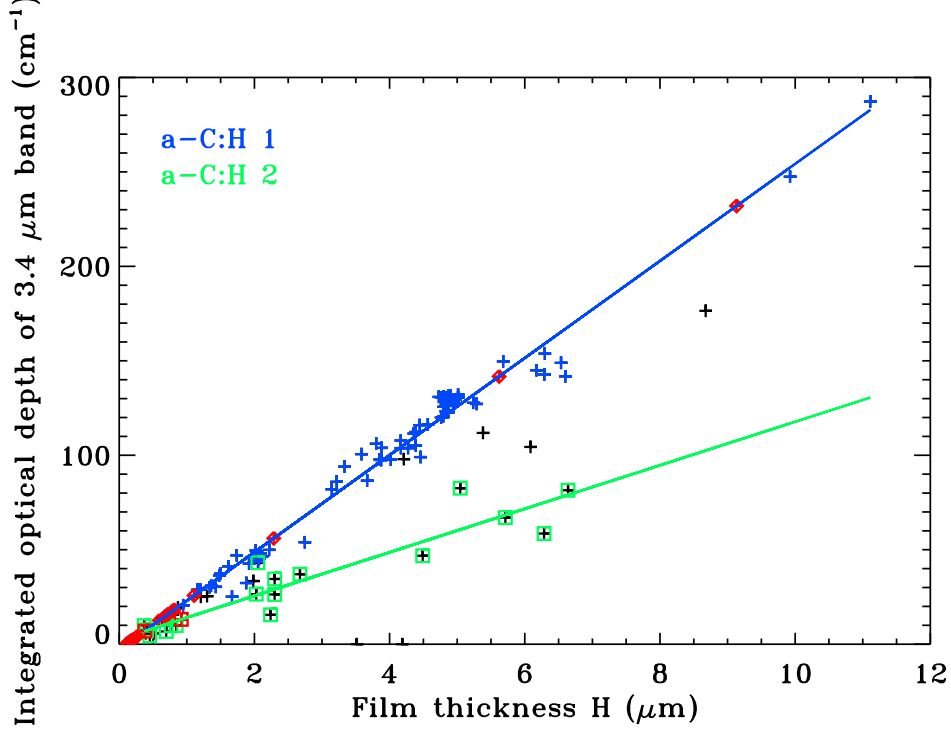


FIGURE 6.16 – Corrélation entre la profondeur optique intégrée sur la bande à  $3.4 \mu\text{m}$  et l'épaisseur des a-C:H. Les a-C:H 1 représentés en bleu et les a-C:H 2 en vert. Les deux droites de corrélations correspondantes sont représentées. Les quelques échantillons dont  $\Delta\sigma$  n'a pas pu être mesuré sont en rouge (les diamants pour les a-C:H 1 et les carrés pour les a-C:H 2).

Les valeurs de l'interfrange  $\Delta\sigma$  peuvent par contre être déterminées assez précisément et permettent d'avoir accès à l'épaisseur  $H$  du film. Comme cette variable dépend aussi de l'indice, on détermine l'épaisseur en supposant d'abord un indice de 1.5 environ, identiques pour tous les a-C:H. Comme nous allons le voir dans la section suivante, d'autres mesures expérimentales sur des a-C:H permettent de relier l'indice du matériau à son gap optique. En partant donc de la mesure de  $\Delta\sigma$  et d'une valeur approximative de l'indice, on détermine une épaisseur  $H$ , puis un gap optique  $E_{04}$  qui permet d'affiner la valeur de l'indice. Cette boucle est effectuée plusieurs fois jusqu'à converger vers une valeur de l'indice adaptée au gap, et l'épaisseur du film correspondante est alors déterminée.

Pour les quelques échantillons pour lesquels la valeur de  $\Delta\sigma$  ne peut pas être déterminée (car aucune frange n'est visible ou si l'épaisseur est telle que moins d'une demi frange est accessible sur le spectre), on s'aidera de la corrélation entre la profondeur optique de la bande à  $3.4 \mu\text{m}$  et l'épaisseur, déterminée à partir des autres échantillons. Cette corrélation est représentée sur la Fig. 6.16, où la profondeur optique intégrée sur tout la bande à  $3.4 \mu\text{m}$  (entre  $2760$  et  $3140 \text{ cm}^{-1}$ ) est représentée par une croix, en fonction de l'épaisseur, pour chaque échantillon

dont la valeur de  $\Delta\sigma$  est déterminée. Puisque l'on a vu avec la Figure 6.10 que le coefficient d'absorption de cette bande pour les différents a-C:H n'est pas le même, on distingue deux groupes d'échantillons, les a-C:H 1 représentés en bleu et les a-C:H 2 en vert. Cette différence de l'absorbance entre ces deux types d'échantillons est bien confirmée par les deux corrélations qui apparaissent. Les quelques échantillons dont  $\Delta\sigma$  ne peut pas être mesuré sont en rouge (les diamants pour les a-C:H 1 et les carrés pour les a-C:H 2) et sont reportés sur la droite de corrélation correspondant à leur type en fonction de leur profondeur optique intégrée. Les épaisseurs qui étaient jusque là manquantes sont ainsi déterminées.

## 6.4 Propriétés déduites des mesures spectroscopiques et d'autres études

### 6.4.1 Estimation de l'indice de réfraction

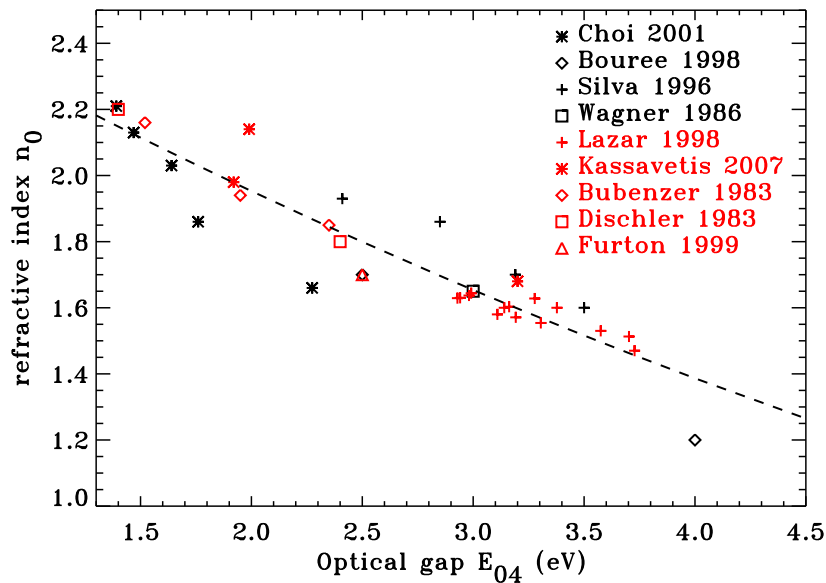


FIGURE 6.17 – **Indice de réfraction de différents a-C:H en fonction de leur gap optique.** Ces données expérimentales sont issues de [Bubenzer *et al.* 1983], [Dischler *et al.* 1983], [Wagner & Lautenschlager 1986], [Silva *et al.* 1996], [Bourée *et al.* 1998], [Lazar 1998], [Furton *et al.* 1999], [Choi 2001] et [Kassavetis *et al.* 2007]). Pour les données représentées en rouge, seulement les valeurs de  $E_{\text{Tauc}}$  étaient disponibles, et ces valeurs ont donc été converties en  $E_{04}$  (cf. Fig. 6.6). La courbe en tirets est un ajustement des données.

La partie réelle de l'indice de réfraction  $n_0$  des échantillons peut être estimée à partir du gap optique  $E_{04}$ . La Figure 6.17 regroupe les résultats de plusieurs études expérimentales des pro-



propriétés des a-C:H ([Bubenzer *et al.* 1983], [Dischler *et al.* 1983], [Wagner & Lautenschlager 1986], [Silva *et al.* 1996], [Bourée *et al.* 1998], [Lazar 1998], [Furton *et al.* 1999], [Choi 2001] ainsi que [Kassavetis *et al.* 2007]) et montre que ces deux paramètres sont en effet corrélés. Étant donné que cette figure rassemble des données où le gap optique est parfois estimé par  $E_{\text{Tauc}}$  et parfois par  $E_{04}$ , les valeurs de  $E_{\text{Tauc}}$  ont été converties en  $E_{04}$  par la relation déterminée sur la Figure 6.6. Ces données où le gap était déterminées par  $E_{\text{Tauc}}$  et qui ont été converties sont en rouge. Cette corrélation entre  $n_0$  et  $E_{04}$  indiquent que les indices de réfraction des a-C:H produits à l'IAS sont entre 1.3 et 1.8 (en accord avec l'intervalle estimé à partir des franges d'interférence) et augmentent lorsque le gap décroît.

#### 6.4.2 Fraction $\text{sp}^2/\text{sp}^3$

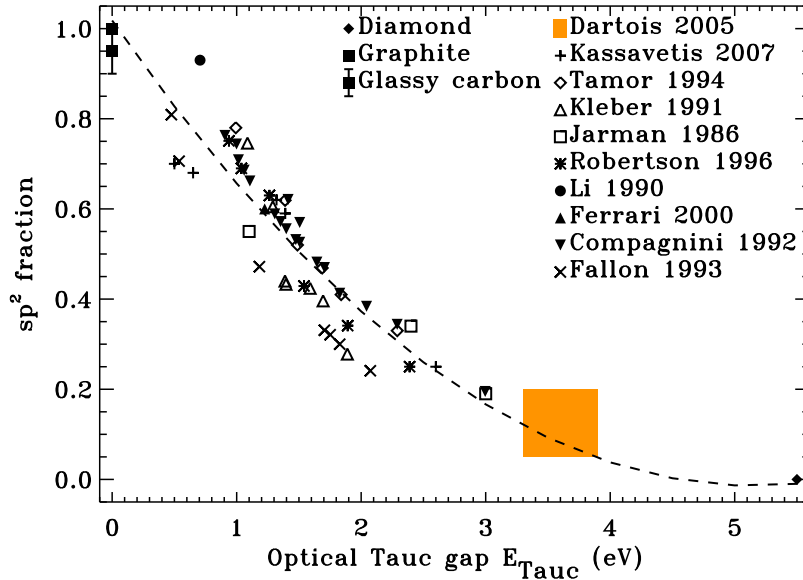


FIGURE 6.18 – Fraction  $\text{sp}^2$  de différents échantillons d'a-C:H en fonction du gap de Tauc. Les données expérimentales sont issues de [Jarman *et al.* 1986], [Li & Lannin 1990], [Kleber 1991], [Compagnini *et al.* 1992], [Fallon *et al.* 1993], [Tamor & Vassell 1994], [Robertson 1996], [Ferrari & Robertson 2000], [Baptista & Zawislak 2004] et [Kassavetis *et al.* 2007]. La zone colorée correspond aux échantillons d'a-C:H de [Dartois *et al.* 2005]. Les cas limites du “glassy carbon” [Robertson 1986, Turlo & Rozwadowskajasniewska 1987], du graphite (carrés pleins), et du diamant (diamants pleins) sont aussi représentés. La courbe en tirets est un ajustement polynomial du second degré de ces données.

Ce sont les états  $\pi$  et  $\pi^*$  des sites  $\text{sp}^2$  qui contrôlent le gap optique. On s'attend donc à ce qu'il y ait une corrélation entre la valeur du gap et la fraction des atomes de carbone dans la

configuration  $sp^2$ . La Figure 6.18 montre des résultats expérimentaux issus de différents articles ([Jarman *et al.* 1986], [Li & Lannin 1990], [Kleber 1991], [Compagnini *et al.* 1992], [Fallon *et al.* 1993], [Tamor & Vassell 1994], [Robertson 1996], [Ferrari & Robertson 2000], [Baptista & Zawislak 2004], [Kassavetis *et al.* 2007]) dans lesquels des mesures de la fraction de  $sp^2$  ( $= \frac{sp^2}{sp^2+sp^3}$ ) et de  $E_{\text{Tauc}}$  sont présentées. Les valeurs estimées pour les a-C:H produits et étudiés par [Dartois *et al.* 2005] sont représentées par la zone en orange. Pour ces analogues, le gap est évalué à partir du fort degré d'hydrogénation et du faible indice de réfraction du matériau. La fraction de  $sp^2$  est estimée entre 5% et 20% à partir du spectre IR. En plus des données concernant les a-C:H, les cas limites de matériaux dont l'hybridation est entièrement ou presque  $sp^2$  (graphite et *glassy carbon*) et entièrement  $sp^3$  (diamant) sont aussi représentés.

Ces données peuvent être ajustées par la relation suivante reliant la fraction de  $sp^2$  à  $E_{\text{Tauc}}$  :

$$\frac{sp^2}{sp^2 + sp^3} = 1.02(\pm 0.03) - 0.40(\pm 0.03) E_{\text{Tauc}} + 0.039(\pm 0.003) E_{\text{Tauc}}^2 \quad (6.27)$$

Les gaps que l'on mesure indiquent des rapports  $sp^2/(sp^2+sp^3)$  entre 10% et 40% environ.

### 6.4.3 Contenu en hydrogène et densité des a-C:H

Ces propriétés des a-C:H (gap optique, fraction de carbone  $sp^2$ , indice de réfraction) sont aussi corrélées avec leur contenu en hydrogène et leur densité. Certaines de ces corrélations ont été mises en avant notamment par [Schwarz-Selinger *et al.* 1999] et [Kassavetis *et al.* 2007], et sont représentées sur la Figure 6.19.

Ces mesures expérimentales permettent de déduire que les a-C:H synthétisés à l'IAS ont, d'une part une densité autour de 1.2 g/cm<sup>3</sup> (entre 1.0 et 1.4 g/cm<sup>3</sup>), et d'autre part un fort taux d'hydrogénation, avec H/(H+C) entre 40 % at. et 50 % at. environ (c'est-à-dire des rapport H/C entre 0.65 et 1)

### 6.4.4 Coefficient d'absorption intégré sur la bande à 3.4 $\mu\text{m}$

Les Figures 6.9 et 6.10 nous ont montré que le coefficient d'absorption varie entre les différents a-C:H, et notamment dans la bande des modes d'élongation des liaisons C-H à 3.4  $\mu\text{m}$ . Nous avons pu observer (Fig. 6.10 de gauche) que la valeur de  $\alpha$  dans cette bande augmente avec la valeur du gap optique. Afin de quantifier cette variation corrélée de  $\alpha$  et du gap, on trace sur la Fig. 6.20 la valeur de ce coefficient d'absorption intégré sur la bande à 3.4  $\mu\text{m}$  (entre 2760 et 3140 cm<sup>-1</sup>) pour les différents échantillons qui ont été produits (croix noires), en fonction de leur gap optique. Pour comparer ces résultats avec ceux trouvés dans la littérature [Choi 2001, Bubenzer *et al.* 1983] (points oranges), on trace d'une part  $\int \alpha d\sigma$  (en cm<sup>-2</sup>) en fonction de  $E_{04}$  (en haut, directement comparable aux valeurs de [Choi 2001]), et d'autre part  $\int \alpha d\lambda$  (en cm<sup>-1</sup>  $\mu\text{m}$ ) en fonction de  $E_{\text{Tauc}}$  (en bas, directement comparable aux valeurs de [Bubenzer *et al.* 1983]). Ces résultats confirment clairement la tendance observée avec la Fig. 6.10.

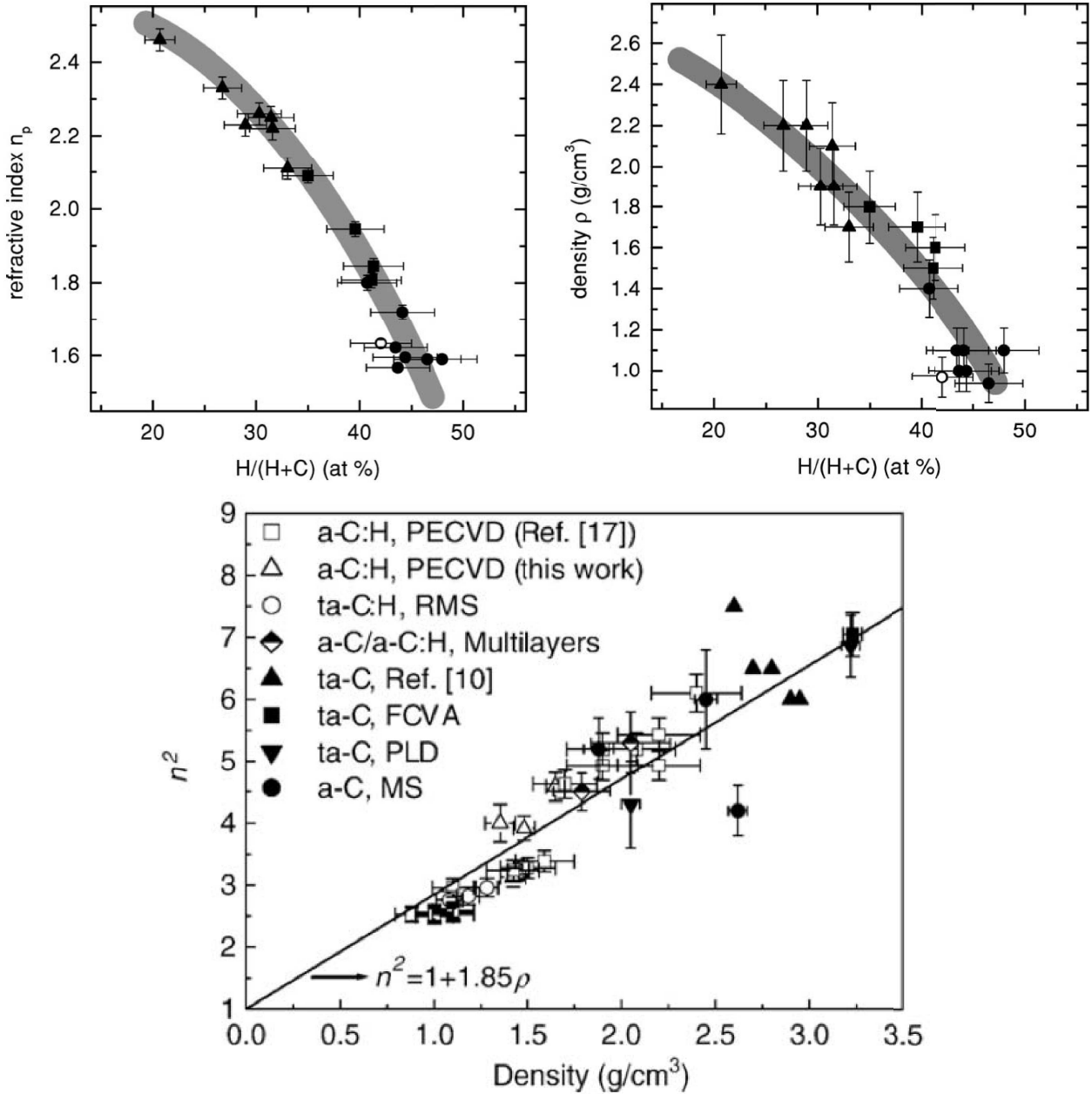


FIGURE 6.19 – Corrélations entre l'indice, le contenu en hydrogène et la densité des a-C:H. Les figures en haut ont été produites par [Schwarz-Selinger *et al.* 1999] et celle du bas (représentant aussi des données de carbones amorphes non hydrogénés) par [Kassavetis *et al.* 2007].

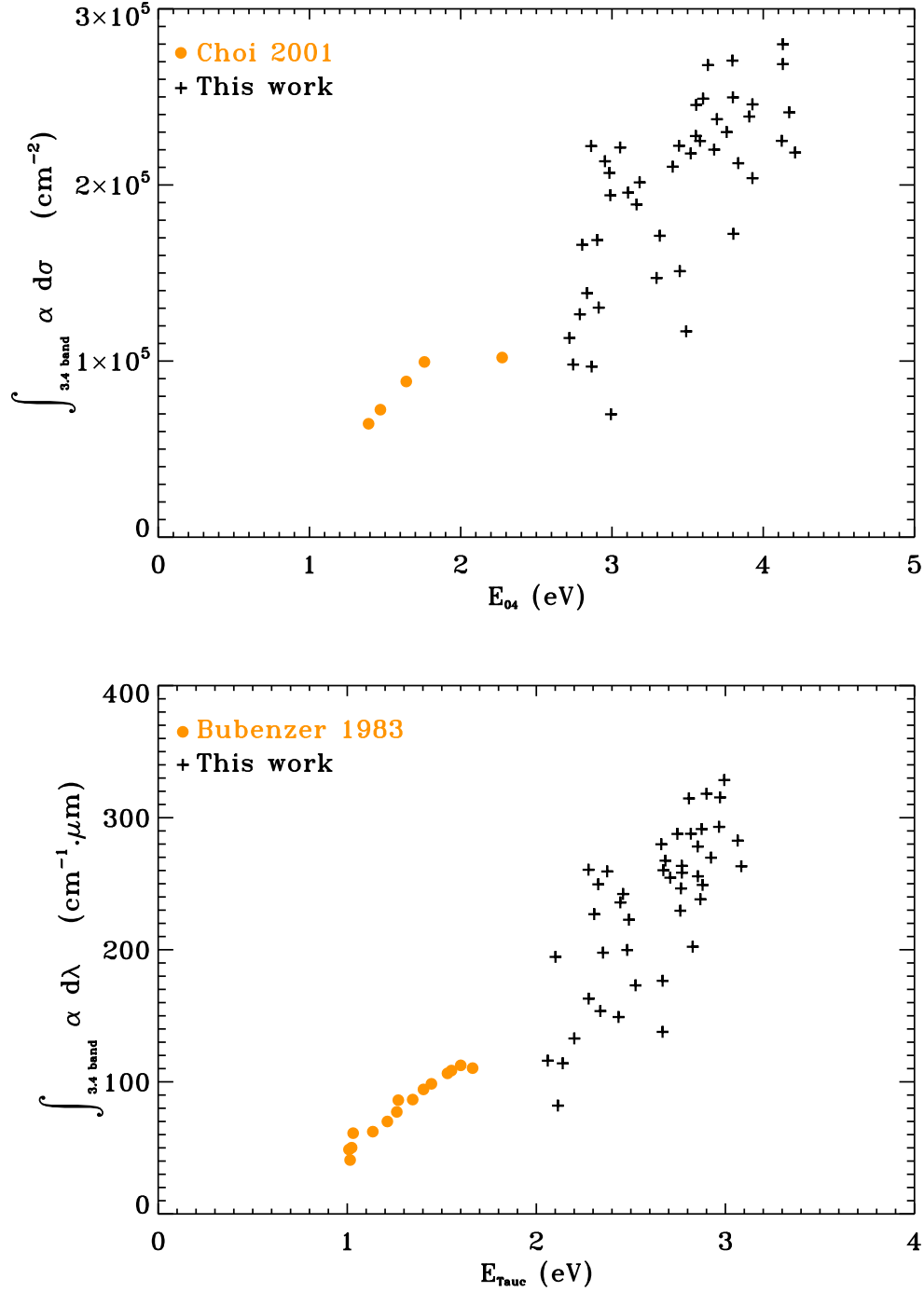


FIGURE 6.20 – Coefficient d'absorption intégré sur la bande à  $3.4 \mu\text{m}$  en fonction du gap optique. Les résultats obtenus avec les échantillons d'a-C:H produits à l'IAS sont représentés par les croix noires, et sont comparés à ceux obtenus par [Choi 2001] et [Bubenzer *et al.* 1983] (points oranges). Pour avoir des variables directement comparables à celles de la littérature, on trace en haut les valeurs de  $\int \alpha d\sigma$  (en  $\text{cm}^{-2}$ ) en fonction de  $E_{04}$ , et en bas celles de  $\int \alpha d\lambda$  (en  $\text{cm}^{-1} \mu\text{m}$ ) en fonction de  $E_{\text{Tauc}}$ .



# Photoluminescence des a-C:H. Implications pour l'émission rouge étendue

---

## Sommaire

<b>7.1</b>	<b>Introduction</b>	<b>125</b>
<b>7.2</b>	<b>Mesures de photoluminescence</b>	<b>126</b>
7.2.1	Le fluorimètre	127
7.2.2	Diffuseur lambertien	129
7.2.3	La sphère intégrante et utilisation d'un étalon de PL	131
<b>7.3</b>	<b>Détermination du rendement de PL absolu et intrinsèque</b>	<b>132</b>
7.3.1	Avec le fluorimètre	132
7.3.2	Validation de la méthode avec la sphère intégrante	136
<b>7.4</b>	<b>Résultats</b>	<b>137</b>
7.4.1	Influence du gap optique $E_{04}$	139
7.4.2	Influence de la longueur d'onde d'excitation $\lambda_{exc}$	142
<b>7.5</b>	<b>Discussion</b>	<b>144</b>
7.5.1	Spectres de photoluminescence	144
7.5.2	Rendements de photoluminescence	146
7.5.3	Excitation de la photoluminescence	150
7.5.4	"Fatigue" et atténuation de la PL due à l'oxygène	151
7.5.5	Photoluminescence des a-C:H dans les conditions interstellaires	153
7.5.6	Résumé de la comparaison entre la PL des a-C:H et l'ERE	155
<b>7.6</b>	<b>Conclusion</b>	<b>156</b>

---

## 7.1 Introduction

Nous avons vu dans la section 2.3.2.3 que l'émission rouge étendue (ERE) est une bande d'émission large, dans le rouge, observée dans des environnements interstellaires variés. Cette

signature spectrale est probablement due à de la photoluminescence (PL) de poussières interstellaires. Malgré les nombreux candidats proposés depuis la découverte de cette émission dans les années 70, les porteurs de l'ERE ne sont toujours pas identifiés. Pour pouvoir identifier ce matériau interstellaire, ou restreindre le nombre de candidats, les contraintes imposées par les observations de l'émission rouge étendue doivent être soigneusement comparées aux propriétés de chaque analogue interstellaire potentiellement responsable de l'ERE. En particulier, les rendements de photoluminescence de l'ERE déduits des observations semblent assez élevés et constituent donc l'une des contraintes les plus fortes concernant cette signature spectrale et ses porteurs.

Les carbones amorphes hydrogénés produisent de la photoluminescence dans le visible et ont été l'un des premiers candidats proposés comme porteurs de l'émission rouge étendue [Duley 1985, Witt & Schild 1988, Duley & Williams 1990, Furton & Witt 1993, Duley *et al.* 1997, Darbon *et al.* 1998, Seahra & Duley 1999]. Ces matériaux étant un constituant important de la poussière interstellaire, il est nécessaire d'évaluer les propriétés de photoluminescence des a-C:H pour estimer leur contribution à l'émission interstellaire et, en particulier, tester leur éventuelle compatibilité avec les porteurs de l'ERE. Les rendements de PL des a-C:H doivent notamment être rigoureusement mesurés. Jusqu'à présent, les études sur la PL de carbones amorphes hydrogénés d'intérêt astrophysique ont principalement fourni des résultats en terme de rendements relatifs et pour seulement quelques longueurs d'onde d'excitation (e.g. [Rusli *et al.* 1996]). Les rares mesures de rendements de photoluminescence *absolus* pour les a-C:H [Furton & Witt 1993, Furton *et al.* 1999, Ledoux *et al.* 2001] varient sur quatre ordres de grandeur alors que certains de ces matériaux sont censés être comparables. De plus, des effets optiques, qui peuvent donner lieu à un rendement apparent différent du rendement intrinsèque au matériau étudié, ne sont pas rigoureusement pris en compte.

Dans ce chapitre, je présenterai l'étude en laboratoire de la PL des carbones amorphes hydrogénés, et la détermination de leurs rendements absolus. Cette étude présente les avantages d'une part de considérer de nombreuses longueurs d'onde d'excitation dans l'UV et le visible, et d'autre part de prendre en compte les effets optiques dus à la géométrie de film des échantillons. Les expériences permettant les mesures de photoluminescence des a-C:H produits seront présentées dans la section 7.2. La section 7.3 décrit comment leurs rendements absolus et intrinsèques de PL sont calculés à partir des mesures. Les résultats concernant les spectres et rendements de photoluminescence seront présentés et comparés à des mesures plus anciennes de rendement relatifs dans la section 7.4. Ces résultats et leurs implications astrophysiques concernant l'ERE seront discutés dans la section 7.5. Ces travaux ont fait l'objet d'un article publié dans le journal *Astronomy & Astrophysics* en septembre 2010 [Godard & Dartois 2010].

## 7.2 Mesures de photoluminescence

Différents types d'échantillons de carbones amorphes hydrogénés sont produits grâce à un plasma, sous forme de film déposé sur un substrat (chapitre 5). Les échantillons sont caractérisés



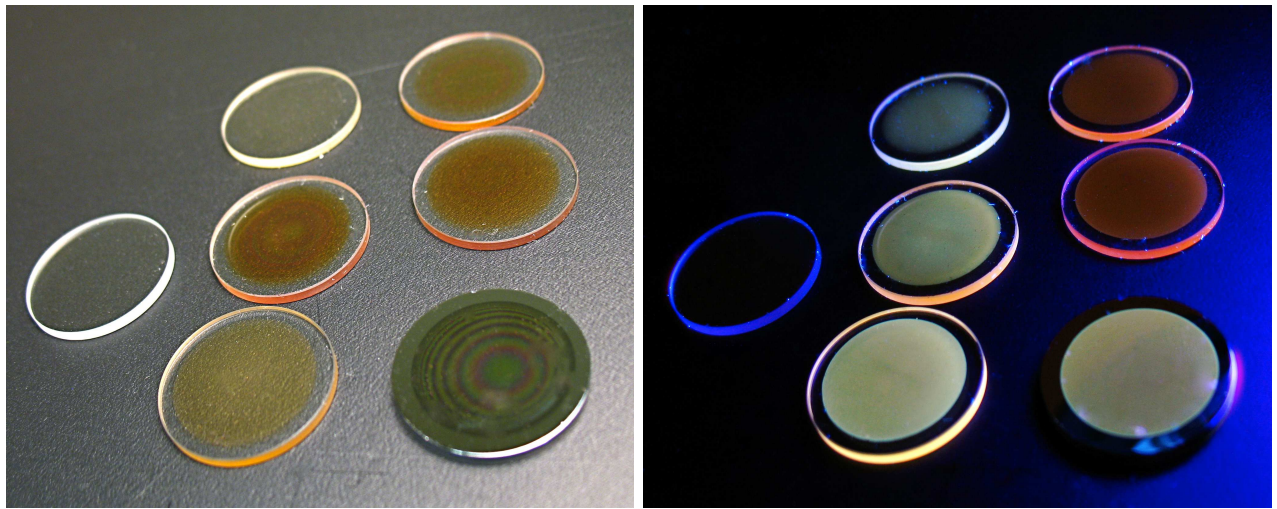


FIGURE 7.1 – **Photo montrant la photoluminescence de différents a-C:H sous une lampe UV.** A gauche, les échantillons sont éclairés par une lumière blanche (leur couleur résulte de la lumière qu'ils absorbent), et à droite, ils sont éclairés par une lampe UV (leur couleur résulte alors de l'émission de PL qu'ils produisent). Les différences de couleurs de PL s'expliquent par les différents types d'a-C:H de ces échantillons. Les échantillons sont des films de différentes épaisseurs, et les substrats utilisés ici sont en quartz ou en germanium (en bas à droite). Un substrat de quartz sans a-C:H est placé à gauche pour comparaison.

par la mesure de leur transmission dans l'UV-visible, l'infrarouge et la détermination de leur gap  $E_{04}$  (chapitre 6). La photoluminescence des échantillons est mesurée à température ambiante, juste après leur production.

La photoluminescence des a-C:H peut tout d'abord être observée en plaçant les échantillons produits sous une lampe UV (optical engineering's model 22-UV). La Figure 7.1 montre clairement une PL dont la couleur apparente varie du jaune au rouge suivant le type d'a-C:H produit.

### 7.2.1 Le fluorimètre

Pour mesurer quantitativement cette photoluminescence, on dispose d'un fluorimètre Perkin Elmer LS55 (*Luminescence Spectrometer*), permettant de mesurer la lumière émise par un échantillon aux longueurs d'onde  $\lambda$ , cette émission faisant suite à l'absorption d'un rayonnement incident d'excitation à la longueur d'onde  $\lambda_{exc}$ . Ce fluorimètre, schématisé sur la Fig. 7.2, est constitué de deux monochromateurs, l'un permettant de sélectionner la longueur d'onde d'excitation et l'autre pour l'analyse spectrale de l'émission. La source d'excitation est une lampe flash xénon, pulsée à une fréquence de 50 Hz, émettant un spectre continu et relativement plat entre 200 et 800 nm. L'échantillon est placé dans un compartiment auquel l'utilisateur a accès. Le milieu extérieur à l'échantillon pendant la mesure, désigné par l'indice 1, est l'air.

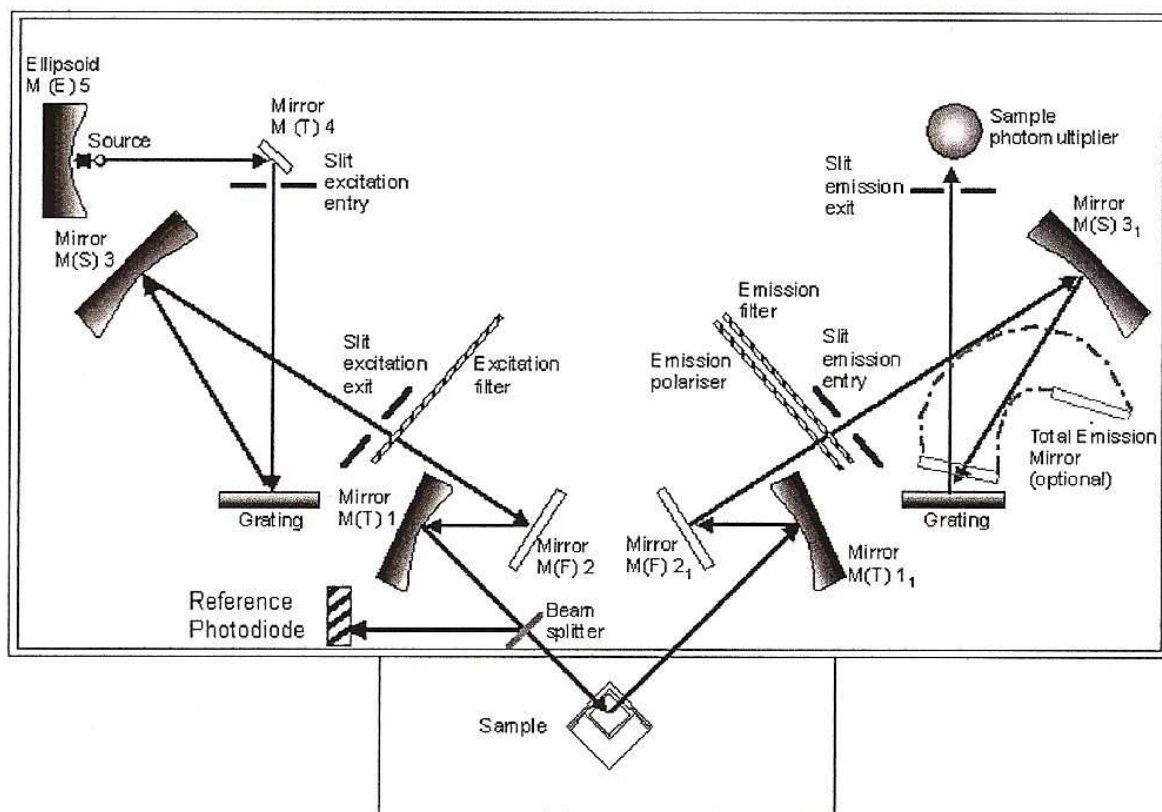
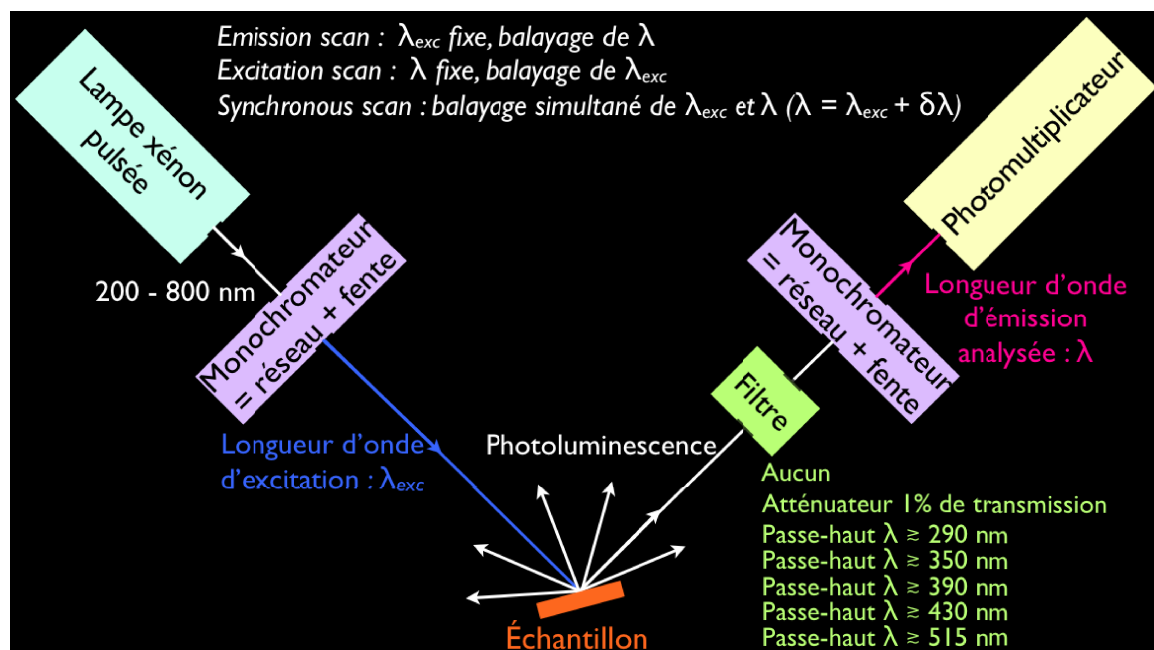


FIGURE 7.2 – Schémas du fluorimètre permettant les mesures de photoluminescence. Le deuxième schéma est issu de la documentation du Perkin Elmer LS55.

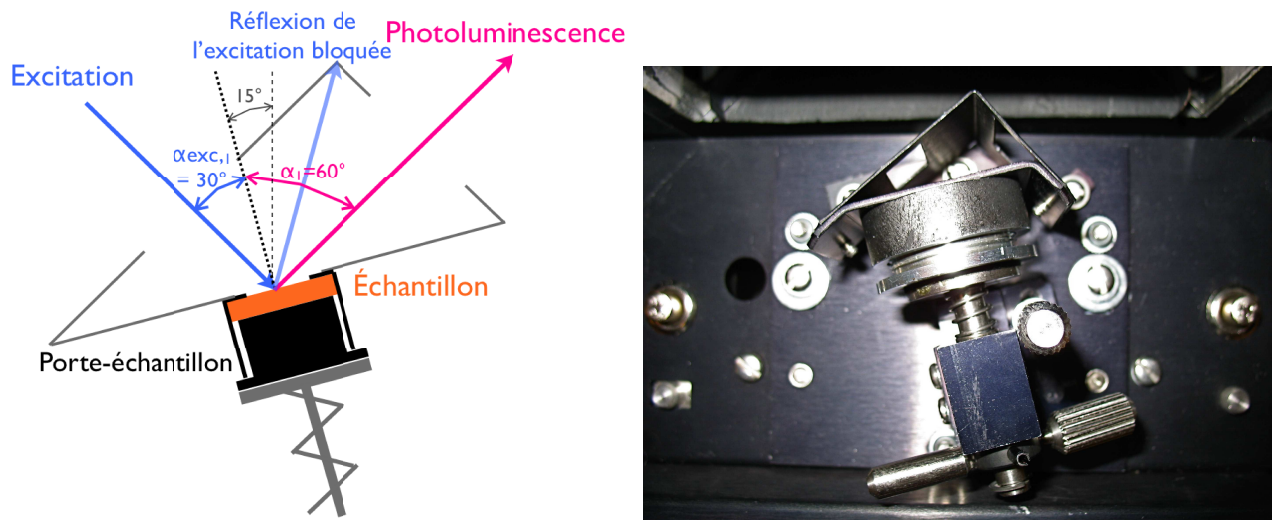


FIGURE 7.3 – Schéma et photo du support de l'échantillon dans le fluorimètre.

Le détecteur est un photomultiplicateur sensible entre 200 et 800 nm. L'échantillon reçoit un rayonnement d'excitation quasi-monochromatique (bande telle que  $\text{FWHM} < 10 \text{ nm}$ ) dans l'UV ou le visible ( $\lambda_{exc} > 200 \text{ nm}$ ), sous un angle fixe  $\alpha_{exc,1} = 30^\circ$  (par rapport à la normale de l'échantillon). La longueur d'onde d'excitation peut être choisie à partir de 200 nm, mais les mesures quantitatives ne seront possibles que pour  $\lambda_{exc} > 250 \text{ nm}$  ( $< 5 \text{ eV}$ ). La géométrie du support de l'échantillon est telle que la réflexion spéculaire de la raie d'excitation est bloquée (Fig. 7.3). L'émission est détectée sous un angle fixe  $\alpha_l = 60^\circ$ . Il est possible de placer un filtre passe-haut (en longueur d'onde) entre l'échantillon et le monochromateur de l'émission afin d'éventuellement couper les longueurs d'onde correspondant à la diffusion de l'excitation par l'échantillon qui se retrouve dans le second ordre du faisceau.

### 7.2.2 Diffuseur lambertien

Afin de mesurer le flux de l'excitation incidente au niveau de l'échantillon, la courbe de transmission des filtres, ainsi que la réponse du fluorimètre entre la position de l'échantillon et le détecteur, on utilise un matériau diffusant de réflectance connue  $\mathcal{R}(\lambda)$ . Le matériau que nous utilisons comme référence est du Spectralon de la marque Labsphere (Fig. 7.4), avec une réflectance de 10% quasiment constante entre 200 et 800 nm. Ce matériau constitue un diffuseur presque parfaitement lambertien. Cela signifie que sa luminance (intensité par unité d'aire apparente dans la direction  $\alpha_1$ , aussi appelée radiance) est uniforme : elle ne varie pas avec la direction de diffusion. Par contre, l'intensité de la lumière diffusée (qui dépend de l'aire apparente de la surface diffusante) suit une loi en cosinus de l'angle  $\alpha_1$ , défini entre la normale à la surface diffusante et la direction de diffusion (Fig. 7.4).

$$I(\alpha_1) = I_{incident} \cos \alpha_1 \mathcal{R} \quad (7.1)$$





FIGURE 7.4 – Photo du Spectralon ( $\mathcal{R}(\lambda) = 10\%$ ) et diffusion lambertienne. Le schéma de droite représente le flux diffusé dans un angle solide  $d\Omega$  en fonction de la direction de diffusion  $\alpha_1$ .

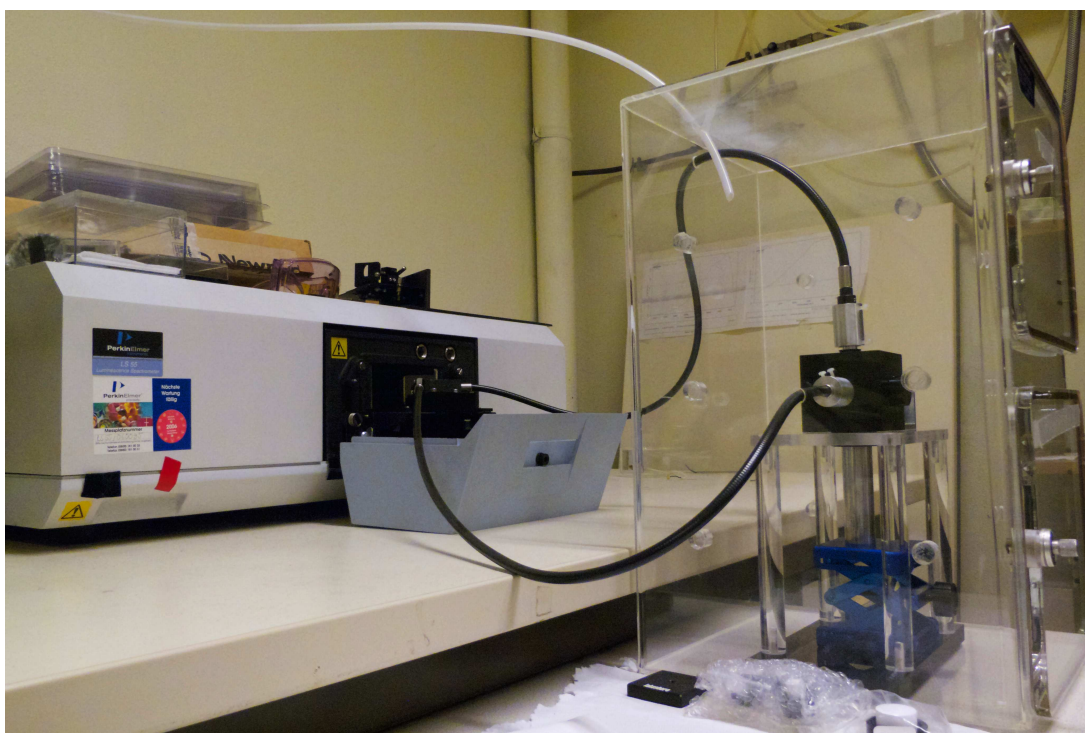


FIGURE 7.5 – Photo de la sphère intégrante couplée au fluorimètre. Une première fibre optique (celle reliée au haut de la sphère) permet d'amener le rayonnement d'excitation dans la sphère, et une seconde (celle reliée au côté de la sphère) recueille l'émission et l'achemine jusque vers le détecteur du fluorimètre. L'échantillon est placé en bas de la sphère. La sphère intégrante est placée dans une boîte sous air purgé.

Dans le cas où  $\mathcal{R}(\lambda) = 1$ , la conservation de l'énergie indique que la puissance incidente  $P_{incident}$  est égale à la puissance diffusée totale.

$$P_{incident} = \int_{2\pi \text{ sr}} I(\alpha_1) d\Omega = \pi I_{incident} \quad (7.2)$$

La puissance diffusée par un diffuseur lambertien dans l'angle solide  $\Omega_1$  autour de la direction donnée par l'angle  $\alpha_1$  est donc :

$$\begin{aligned} P &= \int_{\Omega_1} I(\alpha_1) d\Omega = \int_{\Omega_1} \mathcal{R} I_{incident} \cos \alpha_1 d\Omega \\ P &= P_{incident} \frac{\mathcal{R}}{\pi} \int_{\Omega_1} \cos \alpha_1 d\Omega \end{aligned} \quad (7.3)$$

Afin d'utiliser ce standard dans les mêmes conditions que les échantillons d'a-C:H, le Spectralon a été découpé pour obtenir un cylindre de 20 mm de diamètre afin de pouvoir le placer dans le porte-échantillon.

### 7.2.3 La sphère intégrante et utilisation d'un étalon de PL

Pour pouvoir valider les valeurs absolues de rendement de PL (calculs expliqués dans la section suivante), on utilise une sphère intégrante couplée au fluorimètre par des fibres optiques (Fig. 7.5). Cette sphère intégrante Labsphere est constituée d'une cavité sphérique dont les parois sont en Spectralon de très haute réflectance ( $\mathcal{R}(\lambda) = 99\%$ ) avec de petites ouvertures pour pouvoir placer l'échantillon à l'intérieur et connecter deux fibres optiques qui permettent d'amener l'excitation et de recueillir la photoluminescence. La photoluminescence recueillie par la fibre de sortie est donc celle émise dans toutes les directions et qui a été diffusée de multiples fois sur les parois de la sphère (avec très peu de pertes grâce à la forte réflectance du Spectralon). Le but d'utiliser cette sphère intégrante est de déterminer le rendement absolu de PL par une deuxième méthode indépendante. Les rendements absolus de photoluminescence déterminés d'une part avec le fluorimètre, et d'autre part avec la sphère intégrante, seront comparés et devraient être identiques si les méthodes utilisées sont valides.

Pour réaliser la comparaison entre ces deux méthodes de détermination du rendement absolu, on utilise un cristal de germanate de bismuth ( $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ , appelé BGO) comme étalon. Ce matériau est photoluminescent, avec un rendement à la fois fort et stable. De plus, pour ce matériau, il n'y a pas de recouvrement entre les spectres d'absorption et d'émission (grand décalage de Stokes), ce qui est un avantage car la réabsorption de l'émission par l'échantillon est difficilement prise en compte avec une sphère intégrante.

## 7.3 Détermination du rendement de PL absolu et intrinsèque

### 7.3.1 Avec le fluorimètre

La détermination du rendement intrinsèque<sup>1</sup> et absolu de la photoluminescence d'un échantillon requiert la prise en compte des effets optiques induits lors de la mesure. Les calculs détaillés décrivant ces effets sont présentés dans l'annexe A. Les principales étapes permettant de calculer le rendement à partir des mesures du fluorimètre sont décrites ici. Dans les §A.1 et A.2 de l'annexe, l'émission de lumière par un film est modélisée et les effets d'interférence dus aux réflexions sur les interfaces du film sont calculés [Lukosz 1981, Holm *et al.* 1982, Nollau *et al.* 2000]. Le film est une couche diélectrique absorbante (désignée par l'indice 0) d'épaisseur  $H$ , située entre le milieu extérieur (milieu 1) et le substrat (milieu 2). Les centres luminescents sont considérés comme des dipôles électriques dont les moments  $\vec{p}$  sont orientés aléatoirement.

Pour l'émission de chaque centre lumineux (schématisée sur la Figure 7.6), on distingue deux types de rayons lumineux transmis à l'extérieur du film vers le détecteur : les *rayons directs*  $D$  qui sont directement émis vers le milieu 1, et les *rayons réfléchis*  $R$  qui correspondent à ceux d'abord dirigés vers le milieu 2, c'est-à-dire vers le substrat, ensuite réfléchis à l'interface entre les milieux 0 et 2, et enfin transmis dans le milieu 1 vers le détecteur. Les angles d'émission dans le film des rayons  $D$  et  $R$  depuis la normale à la surface du film sont notés  $\alpha_0$  et  $\pi - \alpha_0$ , respectivement. L'angle  $\alpha_0$  est relié à l'angle d'observation  $\alpha_1$  dans le milieu 1 par la loi de réfraction de Snell-Descartes. Chacun de ces faisceaux est réfléchi de multiples fois aux interfaces du film.

L'amplitude de ces faisceaux est calculée en tenant compte d'une éventuelle auto-absorption de l'émission par le film. Cette auto-absorption, ayant lieu le long du chemin optique entre la position du dipôle émetteur et le milieu 1 (considéré non absorbant), est calculée à partir du coefficient d'absorption du film dans le visible (terme  $e^{-\tau_0(h)}$  dans l'équation 7.7).

Ces faisceaux subissent aussi des pertes lorsqu'ils sont transmis en dehors du film ou réfléchis à ses interfaces. Ces pertes s'expriment au travers des coefficients de Fresnel,  $t_{ij}^{(s,p)}$  and  $r_{ij}^{(s,p)}$ , dont les expressions pour des indices complexes (c'est-à-dire des milieux absorbants) sont données en annexe (§A.3). La transmittance<sup>2</sup> de la puissance émise à l'interface entre l'a-C:H et l'air est :

$$T_{01}^{(s,p)} = \frac{n_1 \cos \alpha_1}{n_0 \cos \alpha_0} \|t_{01}^{(s,p)}\|^2 \quad . \quad (7.4)$$

Une modification significative de l'intensité radiante (en W/sr) entre les milieux 0 et 1 existe

---

1. Le terme de rendement intrinsèque désigne le rendement qui ne dépend pas de la géométrie de l'échantillon et ne dépend que du matériau étudié. On l'obtient en tenant compte des effets optiques, contrairement au rendement apparent, dépendant à la fois de la géométrie de l'échantillon et des conditions de mesure.

2. La transmittance désigne un rapport de puissances, alors que les coefficients de Fresnel correspondent à des rapports d'amplitudes des ondes.

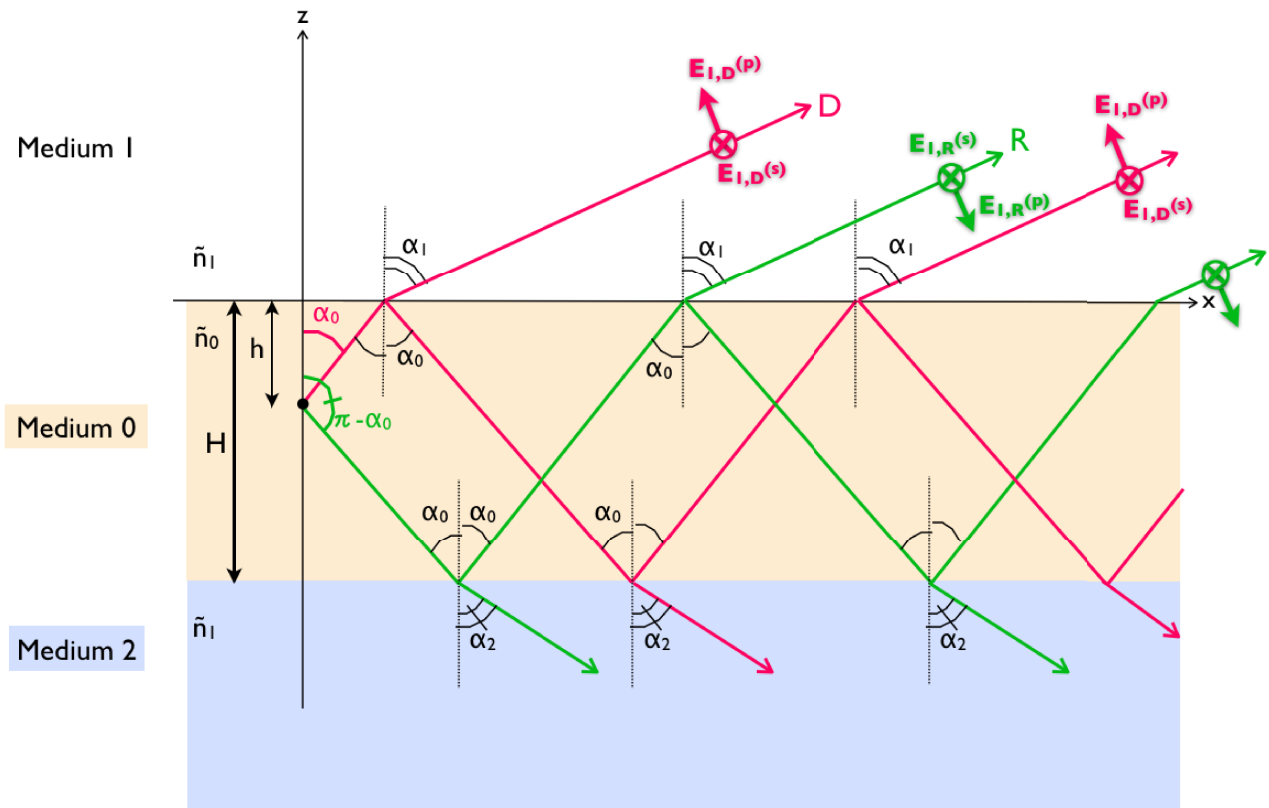


FIGURE 7.6 – Schéma de la géométrie de l'émission par un point source dans un film déposé sur un substrat. Le dipôle produisant l'émission se trouve à une distance  $h$  de la surface du film. Les rayons représentés sont ceux ayant un angle d'émission  $\alpha_1$  dans le milieu 1, et sont la combinaison des rayons directs D (en rouge) et réfléchis R (en vert).

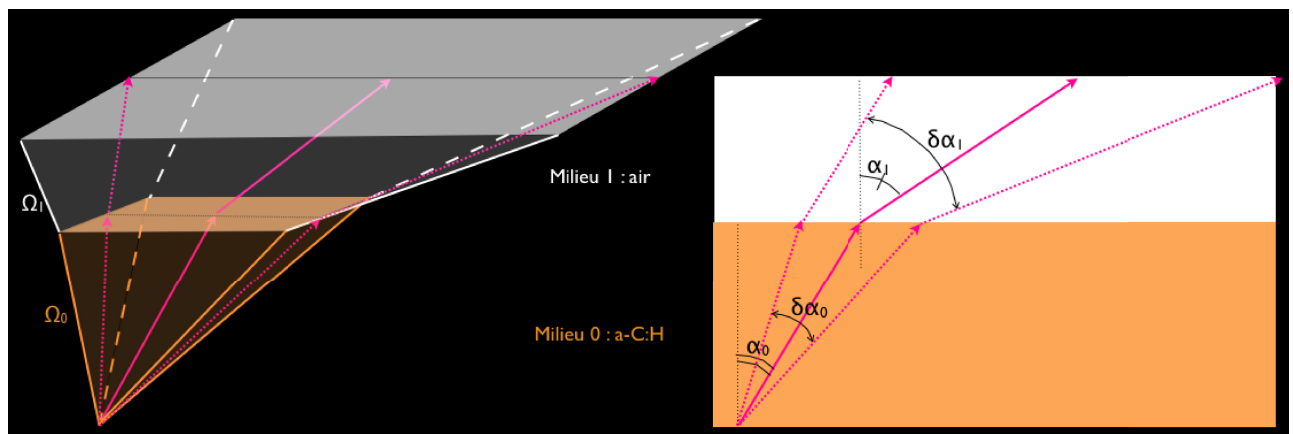


FIGURE 7.7 – Modification de l'angle solide à la traversée d'une interface entre 2 milieux. À gauche, ce changement d'angle solide est représenté dans l'espace, et une coupe dans le plan de réfraction est présentée à droite.



aussi à cause de la modification, à l'interface, de l'angle solide sous lequel l'émission est détectée. Cette modification est représentée sur la Fig. 7.7, et s'exprime par le rapport des angles solides infinitésimaux de chaque milieu (§A.2 en annexe) :

$$\frac{d\Omega_0}{d\Omega_1} = \frac{n_1^2 \cos \alpha_1}{n_0^2 \cos \alpha_0} . \quad (7.5)$$

Les réflexions successives de chaque faisceau aux interfaces du film créent des interférences (*multiple-reflection interferences*) dont l'effet  $M$  peut être calculé. La superposition du faisceau D avec le faisceau R (dont les directions d'émission forment un angle  $\pi - 2\alpha_0$ ) crée d'autres interférences (*wide-angle interferences*) représentées par le terme  $W$  calculé en annexe (§A.2).

La puissance émise par photoluminescence est proportionnelle à la puissance absorbée et au rendement de photoluminescence  $\eta_E$ . La puissance absorbée par le film à la profondeur  $h$  sur une épaisseur infinitésimale  $dh$  est  $Abs(h) dh$ . L'intensité radiante (en W/sr) émise par cette épaisseur de film est donc  $\eta_E \frac{Abs(h) dh}{4 \pi}$ . L'absorption monochromatique résulte en une émission, répartie sur une gamme de longueurs d'onde visibles, selon un profil d'émission normalisée<sup>3</sup>  $Em(\lambda)$ . La puissance absorbée  $Abs$  est déterminée en fonction de la profondeur  $h$  dans le film et de la longueur d'onde d'excitation  $\lambda_{exc}$  à partir du coefficient d'absorption  $\alpha(\lambda)$  dans l'UV-visible et de la puissance de l'excitation incidente sur l'échantillon  $P_{incident}$  :

$$\begin{aligned} Abs(h) dh &= -d \left( T_{10}(\lambda_{exc}) \exp \left[ -\frac{\alpha(\lambda_{exc}) h}{\cos \alpha_{exc,0}} \right] P_{incident} \right) \\ Abs(h) dh &= T_{10}(\lambda_{exc}) \frac{\alpha(\lambda_{exc}) dh}{\cos \alpha_{exc,0}} \exp \left[ -\frac{\alpha(\lambda_{exc}) h}{\cos \alpha_{exc,0}} \right] P_{incident} \end{aligned} \quad (7.6)$$

Le calcul complet, écrit en annexe, montre que l'intensité radiante spécifique  $I_1(\lambda)$  (en  $W \cdot sr^{-1} \cdot nm^{-1}$ ), émise dans le milieu 1 à la longueur d'onde  $\lambda$  et dans la direction donnée par l'angle d'émission  $\alpha_0$ , est exprimée par l'équation 7.7 (les polarisations (s) et (p) sont indiquées par les lettres correspondantes en exposant<sup>4</sup>) :

$$\begin{aligned} I_1(\lambda) &= I_1^{(s)}(\lambda) + I_1^{(p)}(\lambda) \\ I_1^{(s,p)}(\lambda) &= \int_0^H e^{-\tau_0(h)} T_{01}^{(s,p)} \frac{d\Omega_0}{d\Omega_1} M^{(s,p)} W^{(s,p)} \frac{\eta_E Em(\lambda) Abs(h) dh}{8\pi} \end{aligned} \quad (7.7)$$

3.  $\int Em(\lambda) d\lambda = 1$

4. On considère que l'émission dans le film est répartie de manière égale entre les deux polarisations. Les intensités radiantes polarisées  $s$  et  $p$  émises dans le film sont donc  $I_0^{(s)} = I_0^{(p)} = \frac{1}{2} \eta_E \frac{Abs(h) dh}{4 \pi}$

avec

$$\begin{aligned}
M^{(s,p)} &= 1 + \rho_{01}^{(s,p)} \rho_{02}^{(s,p)} e^{-2\tau_0(H)} - 2 \rho_{01}^{(s,p)} \rho_{02}^{(s,p)} e^{-\tau_0(H)} \cos(\Delta^{(s,p)}) \\
W^{(s)} &= 1 + \rho_{02}^{(s,p)} e^{-\tau_w} + 2 \rho_{02}^{(s,p)} e^{-\tau_w/2} \cos(\delta_w^{(s)}) \\
W^{(p)} &= 1 + \rho_{02}^{(s,p)} e^{-\tau_w} + 2 \rho_{02}^{(s,p)} e^{-\tau_w/2} \cos(\delta_w^{(p)}) \cos(2\alpha_0) \\
\tau_0(h) &= \frac{4\pi}{\lambda} \kappa_0 \frac{h}{\cos \alpha_0} \\
\tau_w &= \frac{8\pi}{\lambda} \kappa_0 \frac{H-h}{\cos \alpha_0} \\
\Delta^{(s,p)} &= \frac{4\pi}{\lambda} n_0 H \cos \alpha_0 + \delta_{01}^{(s,p)} + \delta_{02}^{(s,p)} \\
\delta_w^{(s,p)} &= \frac{4\pi}{\lambda} n_0 (H-h) \cos \alpha_0 + \delta_{02}^{(s,p)} \quad ,
\end{aligned}$$

$n_i$  et  $\kappa_i$  sont respectivement les parties réelle et imaginaire de l'indice du milieu  $i$ ,  $\rho_{ij}^{(s,p)}$  et  $\delta_{ij}^{(s,p)}$  sont le module et l'argument des coefficients de réflexion de Fresnel, et  $T_{ij}^{(s,p)}$  est la transmittance de Fresnel à l'interface  $i/j$  (cf. §A.3).

La puissance spécifique émise qui est détectée par le fluorimètre dans l'angle solide  $\Omega_1$  (une fois corrigée de la réponse de l'instrument) est

$$P_1(\lambda) = \int_{\Omega_1} I_1(\lambda) d\Omega \quad . \quad (7.8)$$

$I_1(\lambda)$  variant assez peu dans le petit angle solide de détection  $\Omega_1$ , on peut considérer que :  $P_1(\lambda) = I_1(\lambda) \cdot \Omega_1$ .

Le rendement de photoluminescence  $\eta_E$ , défini comme un rapport d'énergie ou de puissance, est donc obtenu par

$$\eta_E = \int_{\lambda} \frac{P_1(\lambda)}{\Omega_1} \frac{d\Omega_1}{d\Omega_0} \frac{1}{S_E} d\lambda \quad , \quad (7.9)$$

où

$$S_E = \int_0^H \left( T_{01}^{(s)}(\lambda) M^{(s)}(\lambda) W^{(s)}(\lambda, h) + T_{01}^{(p)}(\lambda) M^{(p)}(\lambda) W^{(p)}(\lambda, h) \right) \cdot e^{-\tau_0(h)} \frac{1}{4\pi} \frac{\text{Abs}(h)}{2} dh$$

Dans la plupart des articles traitant de l'émission rouge étendue, le rendement de cette émission est donné sous la forme d'un rendement quantique, c'est-à-dire comme un rapport d'un nombre de photons. C'est l'énergie que nous mesurons ici, donc pour effectuer cette conversion, l'énergie doit être multipliée par  $\frac{\lambda}{h \cdot c}$ . Le rendement quantique est alors obtenu grâce à l'Eq. 7.10 :

$$\begin{aligned}
S &= \int_0^H \left( T_{01}^{(s)}(\lambda) M^{(s)}(\lambda) W^{(s)}(\lambda, h) + T_{01}^{(p)}(\lambda) M^{(p)}(\lambda) W^{(p)}(\lambda, h) \right) \cdot e^{-\tau_0(h)} \lambda_{\text{exc}} \frac{1}{4\pi} \frac{\text{Abs}(h)}{2} dh \\
\eta &= \int_{\lambda} \lambda \frac{P_1(\lambda)}{\Omega_1} \frac{d\Omega_1}{d\Omega_0} \frac{1}{S} d\lambda \quad . \quad (7.10)
\end{aligned}$$

En prenant ces effets optiques en compte, on obtient le rendement quantique de photoluminescence *intrinsèque* et *absolu* des a-C:H produits, au lieu d'un rendement apparent lorsque ces effets sont négligés et qui peut être significativement plus bas que le rendement intrinsèque.

La variable  $P_1(\lambda)$  est obtenue à partir de la puissance détectée par le fluorimètre  $P_{1,LS55}(\lambda)$  corrigée par la réponse de l'instrument entre l'échantillon et le détecteur  $R_{LS55}(\lambda)$  :  $P_1(\lambda) = P_{1,LS55}(\lambda) / R_{LS55}(\lambda)$ . Le Spectralon de réflectance connue  $\mathcal{R}(\lambda)$ , positionné à la place de l'échantillon, permet de mesurer l'excitation incidente sur l'échantillon  $P_{incident}$  car l'intensité radiante diffusée par ce standard lambertien dans la direction  $\alpha_1$  est  $\frac{P_{incident,LS55}}{R_{LS55}} = \frac{P_{incident}}{\pi} \mathcal{R} \cos \alpha_1$ .  $P_{incident}$  est donc lié à la mesure de  $P_{incident,LS55}$  par la relation :

$$P_{incident} = \frac{P_{incident,LS55}}{R_{LS55}} \cdot \frac{1}{\mathcal{R}} \cdot \frac{\pi}{\int_{\Omega_1} \cos \alpha_1 d\Omega} \quad (7.11)$$

Dans cette description, on ne tient pas compte de l'émission de PL secondaire, c'est-à-dire la photoluminescence émise par l'échantillon faisant suite à l'auto-absorption de la PL. On ne tient compte que de l'auto-absorption, mais pas de l'éventuelle PL additionnelle qui pourrait en résulter. Comme le remarquent [Mallocci *et al.* 2004], la contribution de cette émission additionnelle est vraiment faible. De plus, cette PL secondaire peut avoir lieu seulement si il y a une superposition spectrale de l'absorption et de l'émission. Cette superposition est faible pour les matériaux que nous considérons ici. Par conséquent, les rendements de PL obtenus en négligeant cette émission secondaire ne sont pas significativement surestimés.

### 7.3.2 Validation de la méthode avec la sphère intégrante

Afin de valider le modèle décrit ci-dessus, utilisé pour déterminer le rendement absolu de PL des a-C:H, on cherche à déterminer le rendement absolu de la PL du BGO par deux méthodes indépendantes. La première méthode est celle aussi utilisée pour les a-C:H et décrite dans le §7.3.1 (les milieux 0 et 2 sont alors tous les deux constitués par le BGO car il n'y a pas de substrat pour cet échantillon). La seconde méthode utilise des mesures réalisées avec la sphère intégrante couplée aux blocs d'excitation et de détection du fluorimètre. La méthode utilisée pour déterminer le rendement absolu de PL d'un échantillon avec une sphère intégrante est décrite par [De Mello *et al.* 1997] et dans l'annexe B.

Les rendements absolus du BGO déterminés par ces deux méthodes et présentés par la Figure 7.8, sont en très bon accord. Ces valeurs sont aussi similaires à celles trouvées par [Rodnyi 1997] et [Weber & Monchamp 1973] ( $\eta \approx 13\%$  à 295K). Ces résultats valident donc la méthode développée pour déterminer les rendements absolus de PL à partir de mesures avec le fluorimètre.

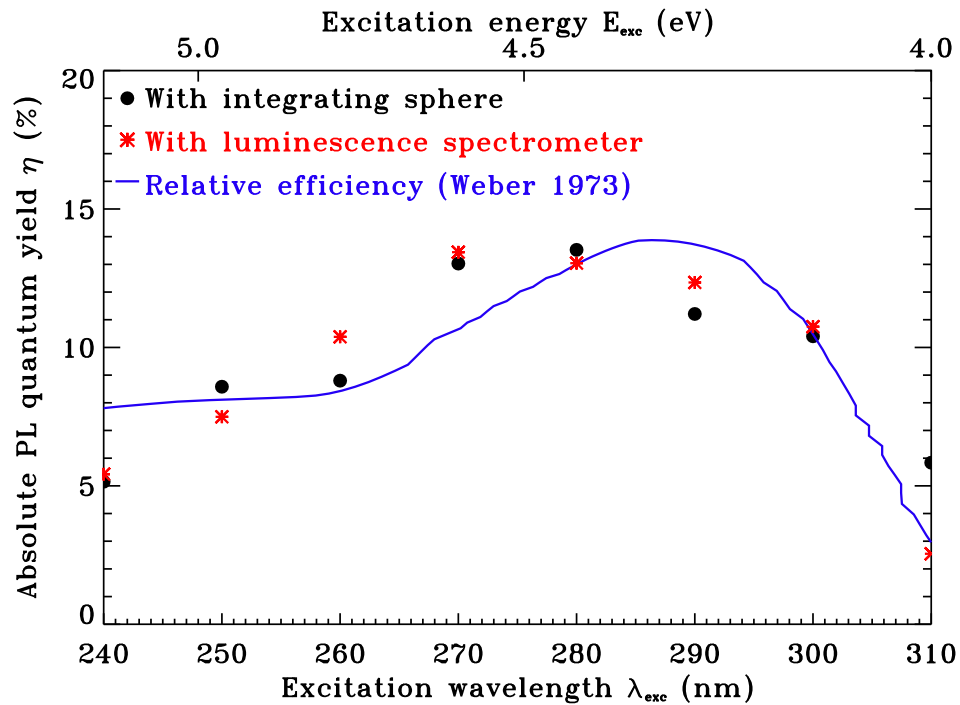


FIGURE 7.8 – Rendement quantique absolu de PL du BGO. Le rendement est mesuré pour différentes longueurs d’onde d’excitation, et déterminé par deux méthodes indépendantes : avec le fluorimètre (croix) et avec la sphère intégrante (points). La variation de l’intensité de PL du BGO (rendements relatifs) avec la longueur d’excitation, mesurée par [Weber & Monchamp 1973] est aussi représentée (courbe bleue).

## 7.4 Résultats

La Figure 7.9 montre un exemple de spectres de PL d’un échantillon d’a-C:H mesurés pour différentes longueurs d’onde d’excitation entre 250 et 490 nm. La PL de cet échantillon apparaît jaune et intense sous la lampe UV. Ces spectres montrent que la photoluminescence produite est une large bande sans structure. La longueur d’onde du maximum de cette bande est à peu près constante entre ces différents spectres jusqu’à ce que l’excitation ait lieu pour des longueurs d’onde correspondant à celles de la bande de PL : lorsque  $\lambda_{exc}$  augmente jusqu’à ces longueurs d’onde, puisque l’énergie émise ne peut pas être supérieure à l’énergie absorbée ( $E_{PL} \leq E_{exc}$ ), la bande de PL semble se déplacer vers les plus grandes longueurs d’onde. Puisque la quantité de rayonnement absorbé diminue pour les plus grands  $\lambda_{exc}$ , l’intensité de PL décroît jusqu’à ce qu’il n’y ait plus aucune émission lorsque l’excitation a lieu à des longueurs d’onde en dehors de celles pouvant être absorbées par le matériau.

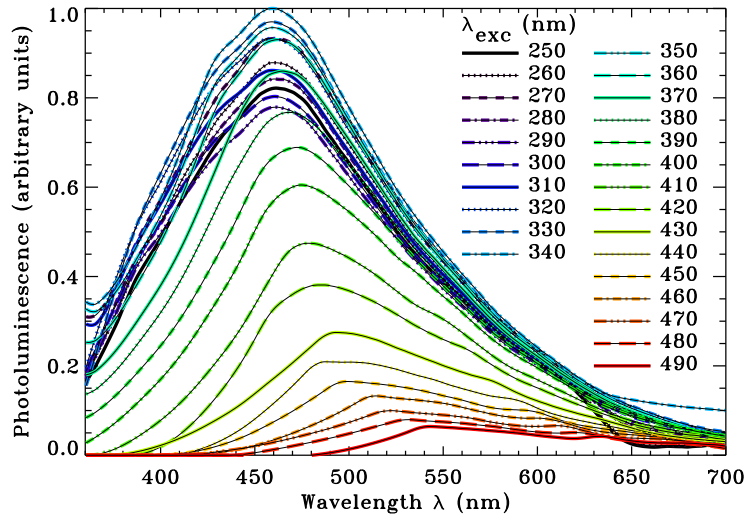


FIGURE 7.9 – Spectres de photoluminescence d'un échantillon d'a-C:H. L'échantillon dont les spectres de PL sont représentés a un gap optique  $E_{04} = 4.1$  eV. Les spectres correspondant à différentes longueurs d'onde d'excitation ( $\lambda_{exc} \in [250, 490]$  nm) sont représentés et illustrent le fait que  $\lambda_{PL} \geq \lambda_{exc}$  (voir le texte pour plus de détails).

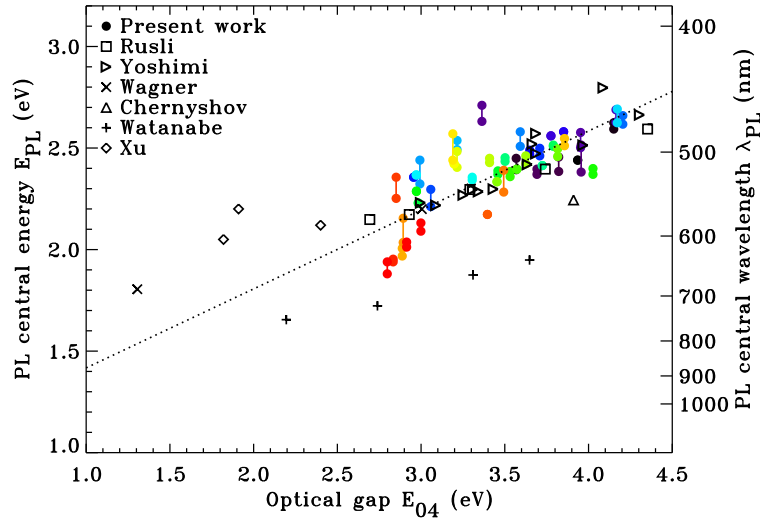


FIGURE 7.10 – Variation de la couleur de photoluminescence des a-C:H avec le gap optique  $E_{04}$ . Les résultats de ce travail (points colorés, chaque couleur correspond à un échantillon différent) sont représentés avec d'autres résultats d'étude de la PL des a-C:H (autres symboles, en noir) [Watanabe *et al.* 1982, Wagner & Lautenschlager 1986, Chernyshov *et al.* 1991, Yoshimi *et al.* 1992, Xu *et al.* 1993, Rusli *et al.* 1996]. Pour chacun des échantillons produits, deux points sont représentés et correspondent aux extrêmes de la longueur d'onde centrale de la bande de PL observés pour  $\lambda_{exc} \in [250, 370]$ . La ligne en pointillés est un ajustement des données.

### 7.4.1 Influence du gap optique $E_{04}$

Différents types de carbones amorphes hydrogénés sont produits en variant les conditions de production, et sont notamment caractérisés par la valeur de leur gap optique  $E_{04}$ , comprise entre 2.7 et 4.4 eV (cf. Chapitre 6). Ces différents matériaux produisent des spectres de photoluminescence variés. La photo de la Fig. 7.1 montre la variation de couleur de PL du jaune au rouge sous la lampe UV entre différents échantillons, et la Fig. 7.10 montre que ce déplacement de la bande de photoluminescence vers les plus grandes longueurs d'onde a lieu lorsque l'énergie du gap optique diminue (les a-C:H dont la PL apparaît jaune sous la lampe UV correspondent à des gap  $E_{04}$  autour de 4 eV et ceux apparaissant rouge sont ceux avec  $E_{04} \approx 3$  eV). Ces résultats sont en accord avec ceux d'autres groupes [Watanabe *et al.* 1982, Wagner & Lautenschlager 1986, Chernyshov *et al.* 1991, Yoshimi *et al.* 1992, Xu *et al.* 1993, Rusli *et al.* 1996], aussi représentés sur la Fig. 7.10.

Lorsque le gap optique varie, la photoluminescence change non seulement de couleur, mais aussi de rendement. La Figure 7.11 montre que les rendements quantiques absolus de nos échantillons d'a-C:H varient de 3% environ jusqu'à 0.01% lorsque la valeur de  $E_{04}$  passe de 4.4 à 2.7 eV. De précédentes études d'autres groupes fournissent des rendements relatifs de la PL des a-C:H [Schütte *et al.* 1993, Xu *et al.* 1993, Silva *et al.* 1996, Rusli *et al.* 1996, Bourée *et al.* 1998]. La décroissance de ces rendements relatifs avec la diminution du gap optique est tout à fait en accord avec nos résultats. On convertit donc ces rendements relatifs en rendements absolus en ajustant l'ensemble de ces points à nos valeurs absolues. Cela permet d'obtenir les rendements des carbones amorphes hydrogénés sur une plus large gamme de gap optique que celle explorée uniquement par les échantillons que nous produisons à l'IAS. Un ajustement exponentiel de la variation du rendement absolu de PL des a-C:H avec le gap  $E_{04}$  (en eV) est donné par l'équation suivante (les incertitudes à  $3\sigma$  sur les paramètres d'ajustement sont indiquées et correspondent aux lignes en pointillés sur la Fig. 7.11) :

$$\eta = 0.44(\pm 0.39) \cdot \exp\left(\frac{-16(\pm 2)}{E_{04} - 0.6}\right) \quad (7.12)$$

Le rendement peut aussi être tracé en fonction de la fraction d'hybridation  $sp^2$  (Fig. 7.12) estimée à partir de l'ajustement présenté sur la Fig. 6.18.

Les Figures 7.11 et 7.12 présentent des ajustements exponentiels correspondant à une équation de la forme  $\eta = \eta_0 \exp[-K/(1 - \frac{sp^2}{sp^2 + sp^3})]$ , donnée par [Robertson 1996] qui décrit le mécanisme de PL des a-C:H. Le dénominateur  $E_{04} - 0.6$  dans la fonction exponentielle de l'Eq. 7.12 permet un bon ajustement des données (Fig. 7.11) et est cohérent avec le décalage entre  $E_{04}$  et  $E_{Tauc}$  et la variation de la fraction de  $sp^2$  avec le gap optique : une valeur de la fraction de  $sp^2$  de 1 correspond à une valeur de  $E_{Tauc}$  autour de 0 (graphite, cf. Fig. 7.12), et donc à  $E_{04} \approx 0.6$ . Le dénominateur  $1 - \frac{sp^2}{sp^2 + sp^3}$  correspond donc à  $E_{04} - 0.6$ . [Robertson 1996] décrit le mécanisme de PL des a-C:H en étendant un modèle proposé pour la PL des a-Si:H. Ce modèle à un électron décrit la PL comme l'émission provenant des recombinaisons radiatives des paires électron-trou piégées dans les états de bord dus aux sites  $sp^2$  du matériau. Même si cette

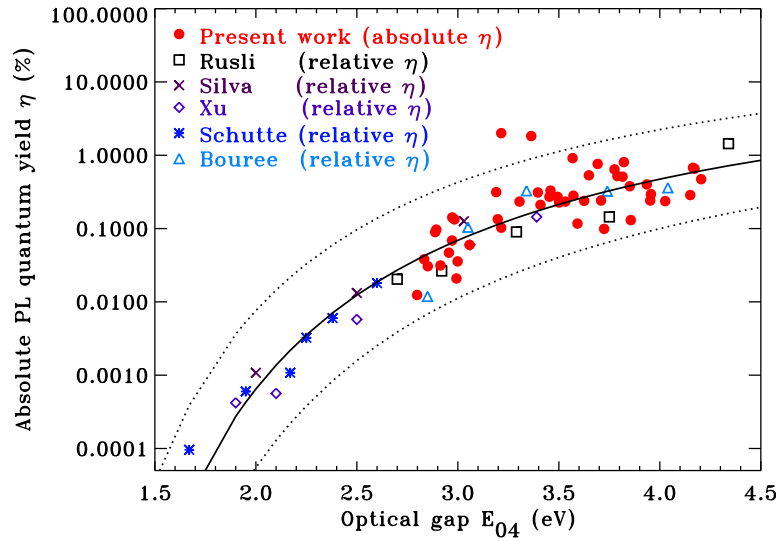


FIGURE 7.11 – Variation du rendement quantique absolu de photoluminescence  $\eta$  des a-C:H avec le gap optique  $E_{04}$ . Les rendements relatifs d'autres études de la PL d'a-C:H [Schütte *et al.* 1993, Xu *et al.* 1993, Silva *et al.* 1996, Rusli *et al.* 1996, Bourée *et al.* 1998] ont été convertis en rendements absolus grâce au recouvrement avec des valeurs que nous avons déterminées (points rouges). La courbe en trait plein est un ajustement exponentiel de ces données et les courbes en pointillés correspondent aux incertitudes à  $3\sigma$  sur les paramètres d'ajustement.

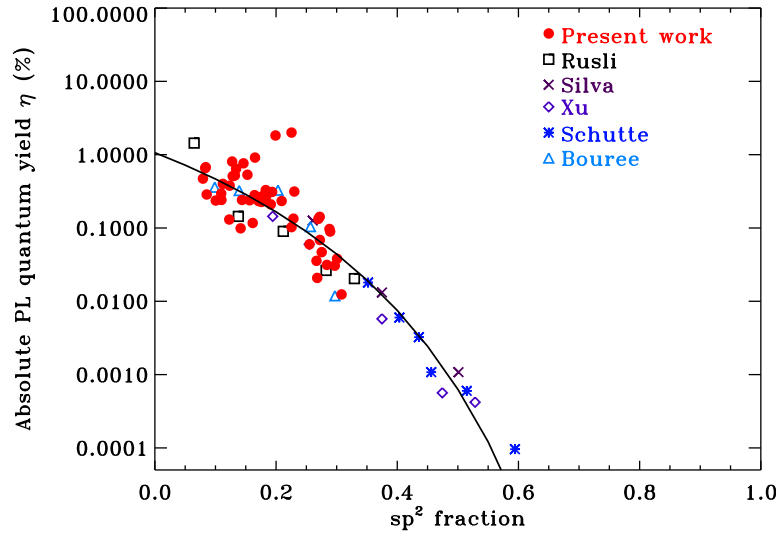


FIGURE 7.12 – Variation du rendement quantique absolu de photoluminescence  $\eta$  des a-C:H avec la fraction d'hybridation  $sp^2$ . La fraction d'hybridation  $sp^2$  ( $\frac{sp^2}{sp^2+sp^3}$ ) est estimée à partir de l'ajustement présenté sur la Fig. 6.18. La courbe est un ajustement exponentiel des données (voir le texte pour plus de détails).



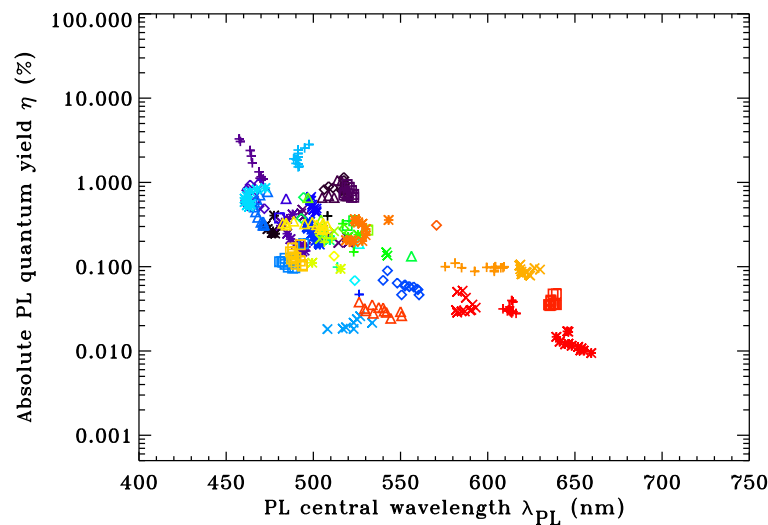


FIGURE 7.13 – Variation du rendement quantique absolu de photoluminescence  $\eta$  des a-C:H avec la longueur d'onde centrale de la bande de PL. Les différents échantillons d'a-C:H produits sont représentés par différents symboles et couleurs (les points multiples pour un échantillon donné correspondent aux différentes longueurs d'onde d'excitation entre 250 et 370 nm).

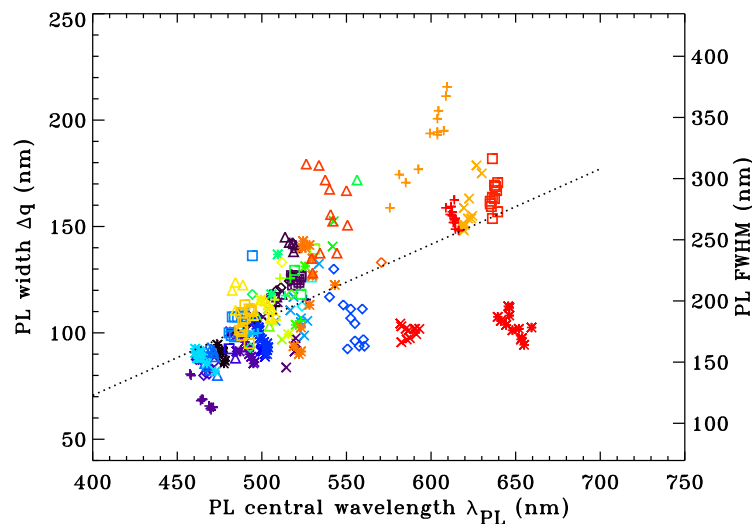


FIGURE 7.14 – Variation de la largeur de la bande de PL avec la longueur d'onde centrale de cette bande. La valeur de la largeur de bande est celle de  $\Delta q$  (méthode des quartiles, axe de gauche) et la FWHM correspondante est indiquée par l'axe de droite (en supposant une gaussienne :  $\Delta q = 0.57FWHM$ ). Les différents échantillons d'a-C:H produits sont représentés par différents symboles et couleurs (les points multiples pour un échantillon donné correspondent aux différentes longueurs d'onde d'excitation entre 250 et 370 nm). La droite en pointillés est un ajustement de ces données.

description semble en accord avec les données expérimentales, [Heitz *et al.* 1999] remarquent que les propriétés de PL des a-C:H indiquent de fortes interactions de Coulomb des paires électron-trou. Cela suggère un comportement comparable à celui des excitons. La décroissance exponentielle du rendement des a-C:H pourrait être gouvernée par la dissociation des paires électron-trou lorsque l'électron, qui a été excité par un photon, migre par effet tunnel vers un site conduisant à une recombinaison non radiative. La densité de ces sites augmente avec la diminution du gap.

L'association des Figures 7.10 et 7.11 démontrent que le rendement de PL diminue lorsque la bande de photoluminescence se décale vers les plus grandes longueurs d'onde. Ce comportement est représenté sur la Fig. 7.13 : l'émission des a-C:H passe d'une PL jaune et intense à une PL rouge et moins efficace lorsque le gap baisse. Cela correspond à des longueurs d'onde centrales  $\lambda_{PL}$  de la bande d'émission entre 460 et 660 nm.

La définition de la largeur de bande d'émission que nous adoptons est celle qui a été le plus souvent utilisée pour caractériser l'ERE. Cette largeur, notée  $\Delta q$ , a été adoptée et définie par [Witt & Boroson 1990] et [Darbon *et al.* 1999] pour l'ERE, à partir des quartiles de l'aire de la bande de PL :  $\Delta q$  est la différence entre les longueurs d'onde des 3<sup>e</sup> et 1<sup>er</sup> quartiles de l'aire de la bande d'émission, c'est-à-dire la largeur dans laquelle la moitié du flux de PL est concentrée. Cette largeur est bien adaptée à des observations astrophysiques où le rapport signal sur bruit est faible, mais n'a pas de sens spectroscopique particulier. Dans les comparaisons entre données de laboratoire et observations astrophysiques, il faut faire attention de ne pas confondre cette définition avec la largeur à mi-hauteur  $FWHM$ <sup>5</sup> car ces deux grandeurs donnent des valeurs très différentes. Dans le cas d'une bande d'émission gaussienne, la largeur définie avec les quartiles vaut 0.57 fois celle de la  $FWHM$ . La Fig. 7.14 montre que la largeur de la bande de PL est corrélée à la couleur de PL. Pour nos échantillons d'a-C:H,  $\Delta q$  augmente de 60 à 220 nm (cela correspond à  $FWHM \in [110, 380]$  nm) lorsque la bande se décale vers les plus grandes longueurs d'onde.

#### 7.4.2 Influence de la longueur d'onde d'excitation $\lambda_{exc}$

L'influence de la longueur d'onde d'excitation sur la photoluminescence des a-C:H est montrée par les Figs. 7.15 et 7.16. Sur la Fig. 7.15, la longueur d'onde centrale de PL est représentée en fonction de la longueur d'onde d'excitation pour différents échantillons. La position de la bande de PL ne varie pas avec  $\lambda_{exc}$ , sauf lorsque l'excitation a lieu dans la bande de PL (c'est-à-dire approximativement à droite des tirets<sup>6</sup>) puisque l'énergie de l'émission est nécessairement plus basse que celle de l'absorption. Lorsque l'excitation a lieu aux longueurs d'onde de la PL, uniquement la partie à grandes longueurs d'onde de la bande de PL est émise, et la longueur d'onde centrale de la PL semble se décaler vers le rouge, comme on peut l'observer sur les Figs.

5. C'est souvent le cas à propos de la largeur de l'ERE : les valeurs données sont souvent annoncées comme  $FWHM$  alors qu'il s'agit en fait des valeurs de  $\Delta q$ ...

6. La ligne en tirets représente l'équation  $\lambda_{exc} = \lambda_{PL} - \frac{2}{3}FWHM$  (la relation entre  $\lambda_{PL}$  et  $FWHM$  est déterminée à partir de l'ajustement représenté sur la Fig. 7.14).

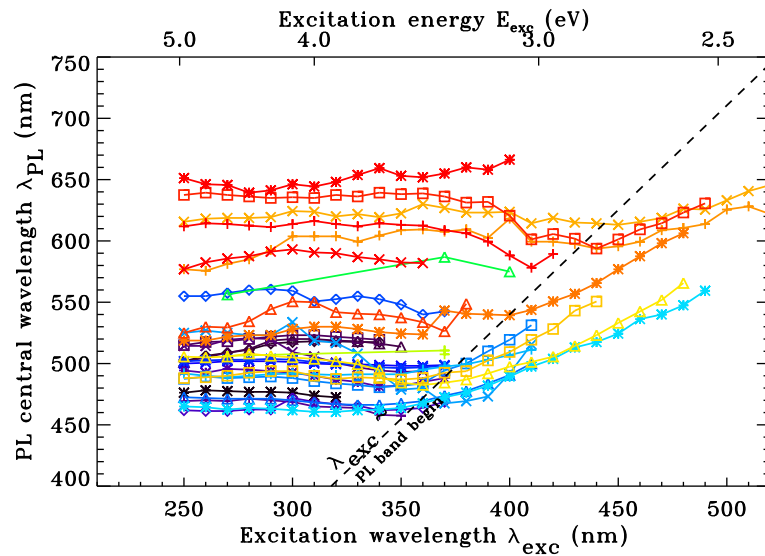


FIGURE 7.15 – **Variation de la longueur d'onde centrale de la bande de PL avec la longueur d'onde d'excitation.** Les différents échantillons d'a-C:H produits sont représentés par différents symboles et couleurs. La ligne en tirets représente l'équation  $\lambda_{exc} = \lambda_{PL} - \frac{2}{3}FWHM$  (la relation entre  $\lambda_{PL}$  et  $FWHM$  est déterminée à partir de l'ajustement représenté sur la Fig. 7.14). Cette droite délimite donc les cas où l'excitation a lieu à des longueurs d'onde plus courtes que celles de la bande de PL (zone à gauche des tirets) des cas où l'excitation a lieu dans la bande de PL (qui se décale alors aux plus grandes longueurs d'onde).

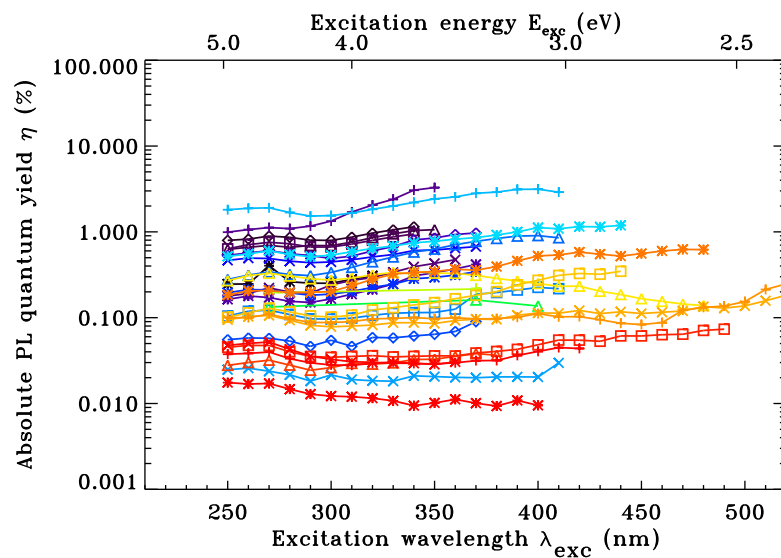


FIGURE 7.16 – **Variation du rendement quantique absolu de photoluminescence  $\eta$  des a-C:H avec la longueur d'onde d'excitation.** Les différents échantillons d'a-C:H produits sont représentés par différents symboles et couleurs.

7.15 et Dans la gamme explorée ( $\lambda_{exc} \geq 250$  nm), l'énergie d'excitation ne semble pas avoir une forte influence ni sur la couleur de PL, ni sur son rendement. Le rendement quantique est à peu près constant pour les différentes longueurs d'onde d'excitation explorées (Fig. 7.16).

## 7.5 Discussion

### 7.5.1 Spectres de photoluminescence

Pour comparer la PL des a-C:H aux observations de l'émission rouge étendue, on représente sur la Fig. 7.17 la largeur de la bande de PL  $\Delta q$  (et  $FWHM$ ) en fonction de la longueur d'onde centrale de l'émission  $\lambda_{PL}$ , à la fois pour les a-C:H produits en laboratoire et les observations de l'ERE. Les données de PL des a-C:H sont les mêmes que celles présentées sur la Fig. 7.14 (points noirs) avec en plus les données de [Lin & Feldman 1982, Lin & Feldman 1983, Watanabe *et al.* 1982, Wagner & Lautenschlager 1986, Chernyshov *et al.* 1991, Xu *et al.* 1993, Rusli *et al.* 1996, Ledoux *et al.* 2001, Dartois *et al.* 2005] (différents symboles bleus). Les données correspondant aux observations de l'ERE (carrés rouges) sont issues de la Fig. 1 de [Darbon *et al.* 1999] qui regroupent la plupart des observations spectroscopiques de l'ERE. On a aussi ajouté sur cette figure les observations de l'ERE dans le milieu interstellaire diffus [Szomoru & Guhathakurta 1998] et dans la nébuleuse sombre L780 [Mattila 1979] pour lesquelles la largeur et la longueur d'onde centrale de la bande d'émission sont bien moins contraintes (carrés rouges avec des barres d'erreurs).

On peut tout d'abord remarquer que les caractéristiques spectrales de l'ERE dans le MIS diffus semblent différentes de celles des autres détectons de l'ERE : l'émission rouge étendue du milieu diffus semble avoir lieu à plus courtes longueurs d'onde et avec une bande plus large que dans les autres environnements interstellaires. [Szomoru & Guhathakurta 1998] ont observé une bande d'ERE centrée en 600 nm, alors que les valeurs de  $\lambda_{PL}$  sont entre 650 et 700 nm dans les nébuleuses par réflexion (e.g. [Witt & Boroson 1990]), autour de 700 nm dans le halo de la galaxie M82 [Perrin *et al.* 1995], entre 700 et 780 nm dans les nébuleuses planétaires [Furton & Witt 1990, Furton & Witt 1992] et les régions HII [Perrin & Sivan 1992, Sivan & Perrin 1993, Darbon *et al.* 1998, Darbon *et al.* 2000] et semblent même être au-dessus de 800 nm dans la galaxie Evil Eye [Pierini *et al.* 2002]. Une autre détection de l'ERE dans le milieu interstellaire diffus des nuages à hautes latitudes galactiques par [Witt *et al.* 2008] (non représentée sur la Fig. 7.17 car la largeur ne peut pas être déterminée) semble confirmer que l'ERE dans le MIS diffus est centrée autour de 600 nm. Les détectons de l'ERE dans ces environnements sont peu nombreuses et difficiles (cf. discussion ci-après), mais si ces observations se confirment, cela montrerait la spécificité des conditions et/ou des porteurs de l'ERE dans le milieu interstellaire diffus.

Sur la Fig. 7.17, on remarque que les propriétés de PL des a-C:H produits par les différentes équipes sont assez variées. Cela montre bien la large gamme de matériaux qui peut être produite par différentes conditions de production. Une partie de ces différences de caractéristiques de PL

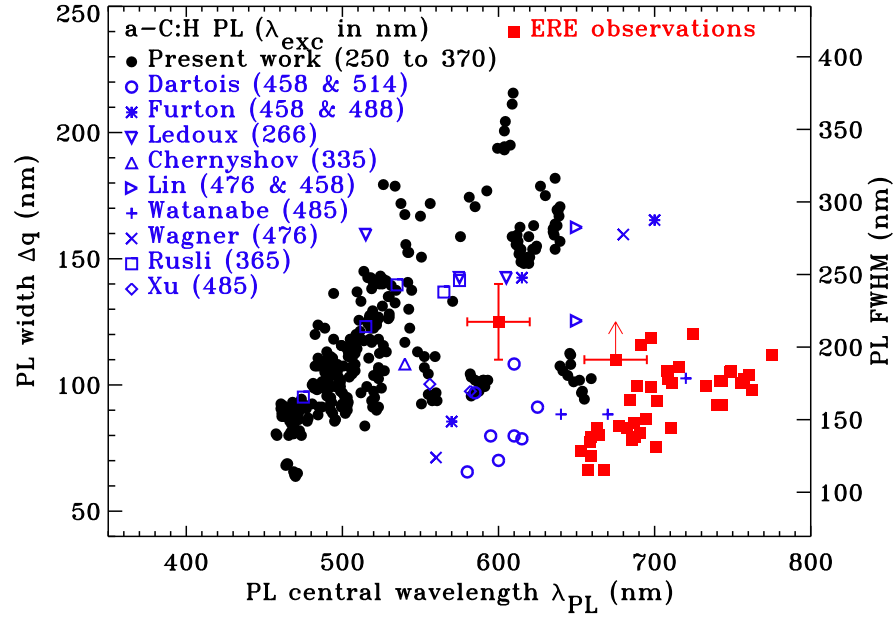


FIGURE 7.17 – Comparaison des caractéristiques spectrales (largeur et longueur d’onde centrale de la bande d’émission) de l’ERE et de la PL des a-C:H. Les données correspondant à l’ERE sont les carrés rouges. Celles de la PL des a-C:H sont les points noirs pour nos mesures et les autres symboles bleus pour les données issues de précédentes études [Lin & Feldman 1982, Lin & Feldman 1983, Watanabe *et al.* 1982, Wagner & Lautenschlager 1986, Chernyshov *et al.* 1991, Xu *et al.* 1993, Rusli *et al.* 1996, Ledoux *et al.* 2001, Dartois *et al.* 2005]. Les données correspondant aux observations de l’ERE sont issues de la Fig.1 de [Darbon *et al.* 1999] auxquelles on a ajouté les observations de l’ERE dans le MIS diffus par [Szomoru & Guhathakurta 1998] (carré rouge avec des barres d’erreurs sur  $\Delta q$  et  $\lambda_{PL}$ ) et pour la nébuleuse sombre L780 [Mattila 1979] (la flèche représente une limite inférieure sur  $\Delta q$ ).

peut être expliquée par les différentes longueurs d’onde d’excitation utilisées (indiquées entre parenthèses sur la figure). Comme le montrent les Figs. 7.9 et 7.15, la longueur d’onde centrale et la largeur de la bande de PL sont constantes pour différentes longueurs d’onde d’excitation, sauf lorsque  $\lambda_{exc}$  entre dans la bande d’émission. Dans ce cas, la bande apparaît plus fine et à plus grandes longueurs d’onde. Même si certaines des différences entre les propriétés de PL des a-C:H apparaissant sur la Fig. 7.17 peuvent s’expliquer par l’utilisation de grandes longueurs d’onde d’excitation, cette figure met en avant les larges variations de caractéristiques de PL intrinsèques aux différents types d’a-C:H pouvant être produits.

On observe que la largeur de la bande de PL des a-C:H est corrélée à la longueur d’onde centrale (Fig. 7.14) avec un coefficient de corrélation de 0.86. Ce comportement avait été précédemment observé en laboratoire [Watanabe *et al.* 1982, Furton & Witt 1993] et est donc confirmé par nos mesures. La même tendance est aussi observée pour l’ERE ([Witt & Boroson 1990] et

[Darbon *et al.* 1999] trouvent un coefficient de corrélation de 0.52 et 0.68, respectivement). La largeur de bande  $\Delta q$  de la photoluminescence des a-C:H varie entre 60 et 220 nm pour nos échantillons.

Les caractéristiques spectrales de photoluminescence des a-C:H varient continûment sur une large gamme de couleurs, de largeurs de bande et de rendements. Cette variation des caractéristiques de PL est une des propriétés requises pour les porteurs de l'ERE. Cependant, à part pour les observations de l'ERE dans le MIS diffus, les caractéristiques spectrales de PL (largeur et longueur d'onde centrale de la bande) des a-C:H et de l'ERE ne sont pas totalement en accord. Les a-C:H avec les gap les plus hauts ( $E_{04}$  supérieur à 3.5 eV) ne correspondent pas à la couleur de l'ERE car leurs  $\lambda_{PL}$  sont trop bas. Une partie des a-C:H produits avec un gap plus bas ne correspondent pas non plus à l'ERE car ils semblent produire une bande de PL trop large en comparaison à celle de l'ERE. Il existe tout de même sur la Fig. 7.17 un recouvrement des caractéristiques de PL d'une partie des a-C:H avec certaines des observations de l'ERE, notamment celle dans le milieu interstellaire diffus. On peut aussi remarquer que, pour les observations de l'ERE, il est souvent difficile de déterminer précisément la ligne de base sur laquelle la bande de l'ERE émerge (le plus souvent, la gamme spectrale de ces observations ne dépasse que de très peu la gamme de longueurs d'onde de l'ERE). Si la ligne de base s'avérait être mal déterminée, l'écart entre les observations et les mesures de laboratoire pourrait être plus faible qu'il n'y paraît actuellement.

Ces résultats montrent qu'en variant les conditions de production, différents a-C:H couvrant une large gamme de propriétés spectrales de photoluminescence peuvent être obtenus. Par exemple, les a-C:H produits à l'IAS dont la largeur  $\Delta q$  vaut environ 100 nm peuvent produire des bandes de PL centrées autour de longueurs d'onde variant de 480 à 660 nm. Cette grande variété obtenue avec notre montage expérimental montre qu'il existe probablement une gamme de caractéristiques de PL des a-C:H encore plus large que celle explorée par ces quelques dizaines d'échantillons.

Nous avons vu que la géométrie de nos échantillons a une influence sur l'émission que l'on perçoit et que la photoluminescence apparente est différente de la photoluminescence intrinsèque. Il faut donc garder à l'esprit le fait que l'ERE que l'on observe peut aussi être le résultat d'effets optiques dus à la géométrie de ses porteurs (cf. §7.5.5) : de l'auto-absorption peut avoir lieu dans le grain et peut avoir un effet plus ou moins important suivant la taille du grain [Mulas *et al.* 2004]. Le résultat de l'auto-absorption serait justement de produire une bande de PL en apparence plus étroite et décalée vers les plus grandes longueurs d'onde.

### 7.5.2 Rendements de photoluminescence

Les rendements quantiques intrinsèques de PL de nos échantillons d'a-C:H sont inférieurs ou égaux à environ 3% (cela correspond à des rendements énergétiques de moins de 2% environ <sup>7</sup>). Les rendements baissent lorsque l'énergie du gap est plus faible, c'est-à-dire lorsque la bande

---

7. La différence entre rendements quantiques et énergétiques est plus importante lorsque la PL a lieu à plus grandes longueurs d'onde.

de PL se décale vers le rouge, comme le montrent les Figs. 7.11 et 7.13. Pour le calcul du rendement, il est important de prendre en compte les effets optiques décrits dans la section 7.3.1. En effet, à part les effets d'interférence, chacun de ces comportements (auto-absorption, modification de l'angle solide, coefficient de transmission de l'excitation et de l'émission à l'interface) implique un rendement apparent plus bas que le rendement intrinsèque. La sous-estimation du rendement si l'ensemble de ces effets n'est pas pris en compte est significative car on estime que le rendement apparent est environ 6 fois plus faible que le rendement intrinsèque dans nos conditions de mesure.

La Figure 7.11 montre que les rendements de PL des a-C:H sont les plus forts pour les matériaux ayant les plus hauts gaps. Nous avons aussi vu que les a-C:H avec les hauts gaps sont ceux dont la PL apparaît aux courtes longueurs d'onde, et donc ceux qui semblent le moins correspondre aux couleurs de l'ERE. Cette difficulté pour les a-C:H de satisfaire à la fois la couleur et le rendement de l'ERE est représentée sur la Fig. 7.18 permettant une autre comparaison entre la PL des a-C:H mesurée en laboratoire et les observations de l'ERE. Les mesures de la PL des a-C:H sont celles de la Fig. 7.13, ainsi que les quelques mesures de rendements absolus déterminées avec une excitation par laser [Furton & Witt 1993, Furton *et al.* 1999, Ledoux *et al.* 2001]. Les observations de l'émission rouge étendue sont reproduites à partir de la Table 1 et la Fig. 4 de [Smith & Witt 2002]. Il est possible d'observer une large gamme de rendements des a-C:H

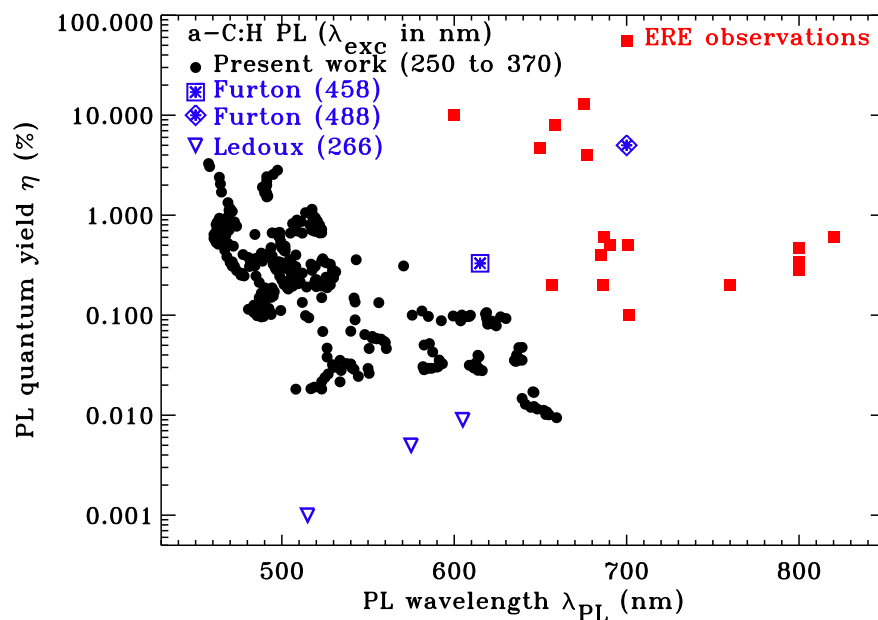


FIGURE 7.18 – Comparaison des rendements  $\eta$  et couleurs  $\lambda_{PL}$  de l'ERE et avec la PL des a-C:H. Les données correspondant à l'ERE sont les carrés rouges. Celles de la PL des a-C:H sont les points noirs pour nos mesures et les autres symboles bleus pour les données issues de précédentes études [Furton & Witt 1993, Furton *et al.* 1999, Ledoux *et al.* 2001]. Les données correspondant aux observations de l'ERE sont issues de [Smith & Witt 2002].



pour des couleurs de PL similaires. Comme pour la Fig. 7.17, ces variations sont bien au-delà des incertitudes de mesure. Cela laisse penser qu'il est probablement possible d'obtenir de plus forts rendements pour des conditions de production spécifiques.

On remarque que les rendements de PL d'a-C:H mesurés par [Ledoux *et al.* 2001] varient avec la valeur de  $\lambda_{PL}$  dans le sens opposé de ce qui est habituellement observé (y compris par nos mesures). Ces rendements sont trois ordres de grandeur plus faibles que nos mesures (pour  $\lambda_{PL} \approx 510$  nm). Cela montre la grande sensibilité du rendement de PL des a-C:H par rapport à leurs conditions de production et de stockage. [Furton & Witt 1993] et [Furton *et al.* 1999] ont aussi mesuré la photoluminescence d'a-C:H et déterminé les rendements absolus correspondant. La plupart des effets optiques discutés dans la section 7.3 n'ont pas été pris en compte dans ces travaux. Bien que ces deux échantillons d'a-C:H sont censés être similaires, une variation du rendement de plus d'un ordre de grandeur est observé entre ces deux études. Les caractéristiques de PL mesurées par [Furton *et al.* 1999] semblent différentes de celles des autres a-C:H comme on peut le voir sur la Fig. 7.18. De plus, le gap  $E_{04}$  devrait avoir une valeur autour de 2.4 eV ( $E_{Tauc} \approx 1.9$  eV, le rendement mesuré de 5% se trouve donc trois ordres de grandeurs au-dessus des valeurs que l'on mesure pour cette gamme de gap optique. On peut aussi remarquer que [Furton & Witt 1993], [Furton *et al.* 1999], et [Ledoux *et al.* 2001], ainsi que les références de la Figure 7.17, utilisent un laser comme source d'excitation de la PL. On peut donc se demander si la puissance du laser pourrait être responsable d'une altération de l'échantillon et de sa PL. [Dartois *et al.* 2005] ont d'ailleurs observé une diminution de l'intensité de PL, qui est en partie restaurée lorsque que l'exposition au laser est arrêtée pendant quelques minutes. On peut donc s'attendre à des rendements plus hauts dans un contexte astrophysique où les photons sont le plus souvent absorbés et relaxés un par un.

La plupart des a-C:H produisent une photoluminescence avec un rendement quantique du même ordre de grandeur que l'essentiel des rendements estimés pour l'ERE, c'est-à-dire entre 0.1% et 1%. La diminution du rendement lorsque la bande de PL se déplace aux plus grandes longueurs d'onde est observée à la fois pour la PL des a-C:H et pour l'ERE. La PL des a-C:H que l'on produit ne semble par contre pas assez efficace et rouge simultanément. Aucun de nos échantillons a un rendement quantique supérieur à 10%, comme les observations de l'ERE dans le MIS diffus par [Gordon *et al.* 1998] et [Szomoru & Guhathakurta 1998] semble le requérir. Le rendement de PL estimé à partir des observations de l'ERE dans la nébuleuse du Rectangle Rouge par [Smith & Witt 2002] est encore plus fort : les auteurs ont traité ce cas à part, mais estiment un rendement de l'ordre de 20% en employant la même méthode que pour les autres nébuleuses par réflexion.

Notons qu'il est difficile d'estimer le rendement de l'ERE à partir d'observations. Cela requiert de faire des hypothèses concernant la gamme d'excitation causant l'ERE et la façon de déterminer le rayonnement absorbé à partir de la diffusion par les poussières (en supposant par exemple la valeur de l'albédo des poussières, la loi d'extinction, la distribution d'énergie de l'étoile, la géométrie de la nébuleuse ...). De petites variations de ces paramètres peuvent faire varier le rendement estimé de plus d'un ordre de grandeur comme le montre une figure de [Smith & Witt 2002] représentée sur la Fig. 7.19. De plus, dans certains environnements

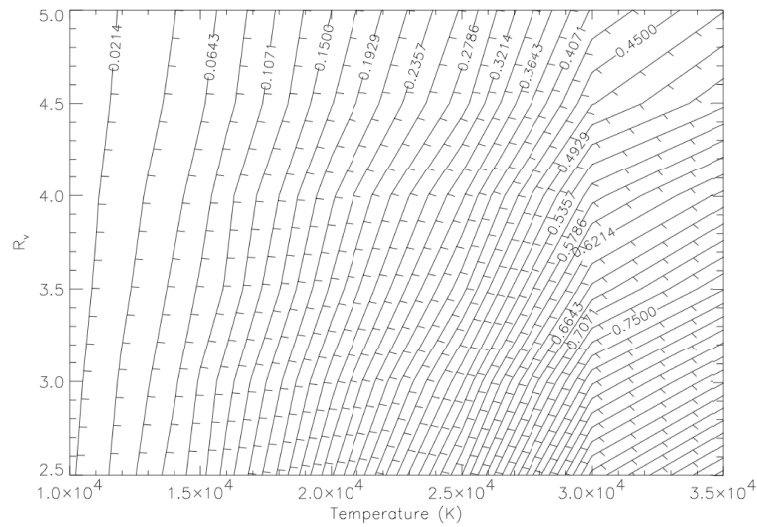


FIGURE 7.19 – **Diagramme de contour illustrant la difficulté d’estimer précisément le rendement de l’ERE à partir des observations.** Cette figure de [Smith & Witt 2002] représente la variation jusqu’à un facteur 30-40 de l’intensité de l’ERE divisée par l’intensité diffusée (aux longueurs d’onde de l’ERE) en fonction des valeurs de la température  $T$  de l’étoile et du paramètre d’extinction  $R_V$ . Les variations de ce rapport d’intensité sont issues d’un modèle, avec dans ce cas un rendement de PL fixe de 1%.  $T$  et  $R_V$  sont parmi les paramètres dont il faut faire l’hypothèse pour chaque source pour pouvoir estimer le rendement de l’ERE associé.

interstellaires (particulièrement dans le MIS diffus), l’ERE est très faible en comparaison du niveau du fond de ciel et de ses fluctuations. Par exemple, la Fig. 2.8 en bas à droite montre bien cette difficulté pour les observations du MIS diffus par [Szomoru & Guhathakurta 1998] : le flux de l’émission du ciel présente une bande d’émission dans la même gamme spectrale que l’ERE et est plus de deux ordres de grandeur plus intense que le signal de l’ERE. La contrainte forte d’un rendement supérieur à 10% pour l’ERE correspond justement aux observations les plus rares et les plus difficiles, celles du MIS diffus [Gordon *et al.* 1998, Szomoru & Guhathakurta 1998]. Les rendements de l’ERE sont estimés en faisant l’hypothèse que la lumière diffusée par la poussière (qui permet d’évaluer l’excitation absorbée) est isotrope. Il est pourtant connu que la fonction de phase du rayonnement diffusé par les poussières interstellaires est telle que la diffusion a lieu majoritairement vers l’avant. L’ERE du milieu interstellaire diffus est le plus souvent observée vers les nuages à haute latitude galactique. L’excitation de l’ERE dans ces environnements est due au rayonnement interstellaire standard (ISRF) dont la direction est fortement non isotrope (provenant majoritairement du plan galactique). La diffusion par les poussières de ces environnements, majoritairement dirigée vers l’avant, est donc envoyée principalement en dehors de la ligne de visée. Le fait de ne pas prendre en compte cette anisotropie de la diffusion peut donner lieu à une sous-estimation de la lumière absorbée par

les porteurs de l'ERE. Puisqu'on s'attend à ce que l'émission de l'ERE soit isotrope, la non prise en compte de l'anisotropie de la diffusion peut donc résulter en une apparente augmentation du rendement de l'ERE dans ces régions, comme le soulignent [Witt *et al.* 2008]. Cela montre que le sujet du rendement de l'ERE est observationnellement complexe.

### 7.5.3 Excitation de la photoluminescence

Nous avons vu (Figs. 7.15 et 7.9) que le spectre de PL des a-C:H (la position et la largeur de la bande) ne varie pas avec les longueurs d'onde d'excitation explorées, sauf lorsque l'excitation a lieu aux énergies de la bande de PL. Dans ce cas, la partie des plus hautes énergies de la bande de PL ne contribue plus à l'émission. Par conséquent, la bande de PL apparaît plus étroite et décalée à plus grandes longueurs d'onde. Ce comportement a précédemment été observé [Chernyshov *et al.* 1991, Rusli *et al.* 1996, Pócsik & Koós 2001].

Le rendement de PL des carbones amorphes hydrogénés ne varie pas non plus dans la gamme de longueur d'onde d'excitation explorée, c'est-à-dire entre 250 nm et les longueurs d'onde de la bande d'émission. Les mesures quantitatives n'ont été possibles que pour des excitations au-delà de 250 nm, mais il a été observé que la PL existe aussi pour des longueurs d'onde d'excitation jusqu'à 200 nm au moins. Le fluorimètre ne nous permet pas de mesurer avec fiabilité le rendement de PL à plus haute énergie d'excitation, mais il serait important d'explorer la PL des a-C:H induite par excitation dans l'UV du vide. Nous avons estimé que la plupart des photons pouvant exciter l'ERE sont dans la gamme d'excitation que nous avons explorée. En effet, nous avons calculé la proportion du nombre de photons dont la longueur d'onde se situe entre 250 et 540 nm par rapport au nombre de photons considérés comme source d'excitation pour l'ERE [Smith & Witt 2002], c'est-à-dire entre 91 nm (l'ionisation de l'hydrogène) et 540 nm (début de la bande d'émission de l'ERE). Nous avons trouvé que ce rapport vaut environ 80 – 85% pour le champ de rayonnement interstellaire standard [Mathis *et al.* 1983] (c'est-à-dire la source d'excitation de l'ERE dans le MIS diffus), et plus de 95% pour la distribution d'énergie du Rectangle Rouge (issue des spectres de [Sitko 1983], [Reese & Sitko 1996] et [Schmidt *et al.* 1980]). Pour une émission de corps noir correspondant à une étoile de type spectral B8, ce rapport vaut plus de 80%. Les rendements quantiques de PL de poussières interstellaires dans ces environnements sont donc principalement déterminés par les photons excitateurs du visible et de l'UV proche.

Il avait été suggéré que l'excitation de l'ERE avait principalement lieu dans l'UV aux longueurs d'onde plus courtes que 250 nm [Witt & Schild 1985, Darbon *et al.* 1999]. [Witt *et al.* 2006, Witt *et al.* 2009] ont plus récemment fait l'hypothèse que l'ERE résulte d'un processus à deux étapes, son initiation, c'est-à-dire la création et/ou l'activation des porteurs de l'ERE, et l'excitation de l'ERE. Les auteurs discutent le fait qu'il est probable que ce soit l'initiation de l'ERE, pas son excitation, qui nécessite la présence de photons UV énergétiques [Witt *et al.* 2006, Witt *et al.* 2009] car le flux de photons UV énergétiques est trop faible pour être responsable de l'excitation de l'ERE qui est observée, même avec de très forts rendements quantiques. Ils ont donc conclu que l'excitation de l'ERE devait être due au pompage optique

des porteurs de l'ERE par des photons de l'UV proche ou du visible. Nous avons montré que les a-C:H produisent de la photoluminescence lorsqu'ils sont excités par un rayonnement de cette gamme spectrale, et dont le rendement est approximativement constant pour l'ensemble de ces longueurs d'onde.

Cette étude démontre que la PL des a-C:H est efficace sur une large bande d'excitation. Les porteurs de l'ERE nécessitent probablement une PL efficace pour une large gamme d'excitation puisque les rendements estimés à partir des observations sont déterminés en considérant que tous les photons absorbés entre la limite de Lyman à 91 nm et le début de la bande de l'ERE autour de 540 nm constitue l'excitation de l'ERE [Smith & Witt 2002]. Par conséquent, un matériau qui serait capable de produire une photoluminescence avec de très forts rendements, mais pour seulement une gamme étroite d'énergies d'excitation pourrait difficilement satisfaire les contraintes imposées par les observations de l'ERE. Cet argument d'une large bande d'absorption dans le visible et l'UV supporte les solides ou grosses molécules comme porteurs de l'ERE.

#### 7.5.4 “Fatigue” et atténuation de la PL due à l'oxygène

Nous avons observé une diminution du rendement de PL de certains de nos échantillons d'a-C:H lorsqu'ils sont exposés au rayonnement UV dans une atmosphère contenant de l'oxygène. Cette diminution de l'intensité de PL est observée, plus ou moins forte suivant les échantillons, à la suite de l'exposition à l'excitation UV/visible pendant plusieurs minutes. On remarque souvent une baisse de PL de l'échantillon qui correspond à la surface où l'excitation est incidente lors des mesures, comme le montre la photo de la Fig. 7.20 d'un des échantillons placé sous la lampe UV (on peut aussi deviner la surface soumise à l'excitation pour les échantillons de la Fig. 7.1). Idéalement, il faudrait mesurer la PL de nos échantillons *in situ*, sans avoir à les remettre à l'air après leur production. Etant conscients de cet effet de “fatigue/*photo-bleaching*” de la PL des a-C:H, nous avons pris soin d'effectuer les mesures de photoluminescence avant tout autre mesure, et juste après la production des échantillons. La fatigue de PL de nos échantillons n'a pas pu être systématiquement caractérisée, mais la Fig. 7.21 donne un exemple de l'ordre de grandeur de cette diminution de l'intensité de PL lorsque l'échantillon est soumis au rayonnement d'excitation (UV dans le cas présent) du fluorimètre pendant un certain temps.

Cette fatigue de la PL peut être activée ou accélérée par l'exposition aux photons et/ou à l'air (plus particulièrement l'oxygène de l'air). Il est possible que ce soit la combinaison de ces deux expositions qui aboutisse à cette baisse de PL, si l'oxygène de l'air réagit avec les a-C:H par photochimie induite par le rayonnement d'excitation. [Sakata *et al.* 1992] ont aussi remarqué un effet de fatigue pour des matériaux proches des a-C:H, appelés QCC (*Quenched Carbonaceous Composites*). Leurs observations semblent montrer que l'irradiation par les UV ne fait qu'accélérer la fatigue qui a aussi lieu (mais avec une échelle de temps de l'ordre du jour plutôt que de l'heure) lorsque les échantillons de QCC sont conservés à l'air dans le noir. Par contre, les auteurs n'ont pas observé de baisse de PL lorsque les échantillons sont conservés

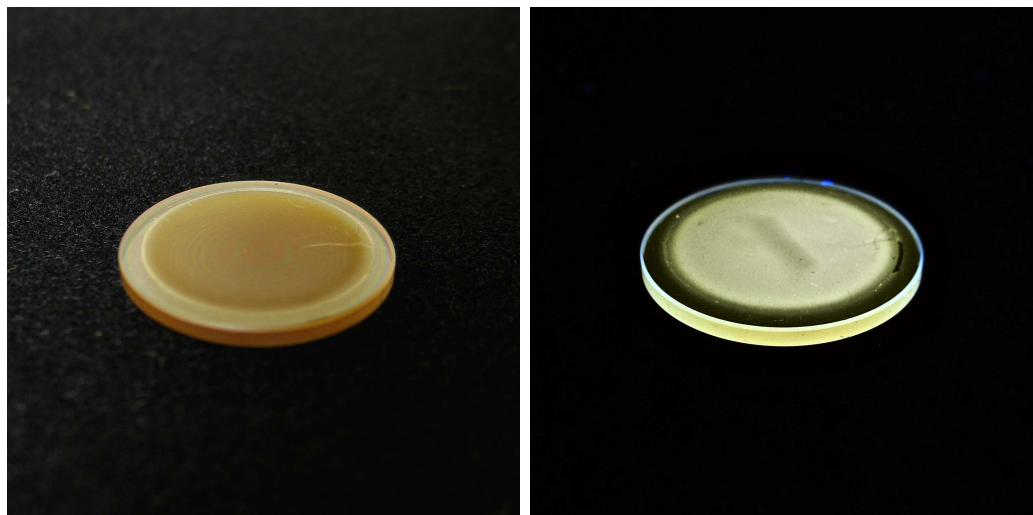


FIGURE 7.20 – **Photos d'un échantillon montrant la fatigue de la PL.** On distingue clairement sur la photo de droite (sous la lampe UV) une intensité de PL plus faible sur une zone rectangulaire de l'échantillon. Cette zone correspond à l'aire qui a été éclairée par le rayonnement d'excitation pendant les mesures avec le fluorimètre.

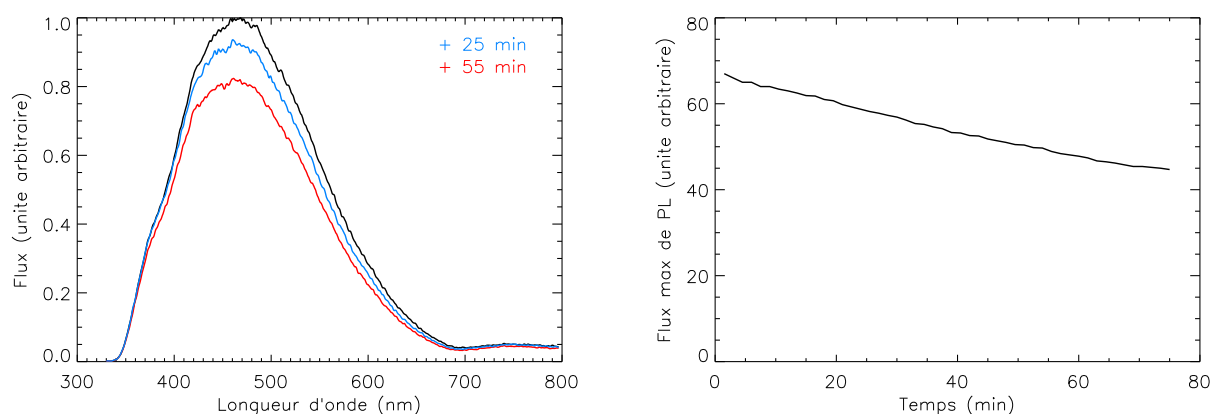


FIGURE 7.21 – **Mesures de la fatigue de PL d'un échantillon soumis à une excitation continue de 260 nm.** *A gauche* : différents spectres de PL mesurés après 0, 25 et 55 minutes d'exposition de l'échantillon à l'excitation continue du fluorimètre à 260 nm. *A droite* : Diminution du maximum de l'intensité de la PL d'un échantillon en fonction du temps d'exposition à l'excitation (à 260 nm).

sous vide dans le noir.

[Xu *et al.* 1993] ont mesuré la fatigue de PL des a-C:H pour une irradiation par des photons visibles (2.54 eV). Ils ont montré que cet effet est plus ou moins fort (de 20% à plus de 90% de réduction de l'intensité de PL) d'un échantillon à l'autre. Il apparaît que les a-C:H avec les gaps optiques les plus larges (c'est-à-dire ceux avec les rendements les plus forts) sont ceux qui sont les plus affectés par cet effet de fatigue. Nous avons aussi remarqué cette différence entre les échantillons de gaps forts et faibles. [Xu *et al.* 1993] ont aussi observé que cette diminution du rendement de PL est réduite lorsque les mesures sont effectuées à basses températures.

[Laikhtman *et al.* 1998] ont étudié l'effet de l'hydrogénation et de l'oxydation sur le rendement de PL de films de diamant. Les valeurs de ces rendements dépendent de l'état de surface : les surface hydrogénées présentent les plus forts rendements, tandis que l'oxydation dégrade l'intensité de la photoluminescence émise. Une quantité même très faible en oxygène (de l'ordre du % atomique) diminue fortement les rendements de PL, par un facteur deux ou trois.

Cela soulève le point que les expériences que nous utilisons pour produire et étudier les échantillons d'a-C:H ne sont pas effectuées dans des conditions d'ultravide comme dans le milieu interstellaire. En particulier, on détecte la présence d'oxygène sous forme de traces au travers d'une faible bande d'absorption IR des groupements carbonyles. La présence d'une faible quantité d'oxygène dans les a-C:H produits, induite soit lors de la production des échantillons, soit lors de l'exposition des échantillons à l'air après leur production, pourrait fortement réduire le rendement de photoluminescence par la création de pièges récupérant les électrons excités par l'absorption du rayonnement.

### 7.5.5 Photoluminescence des a-C:H dans les conditions interstellaires

Dans le cas de nos expériences, les échantillons d'a-C:H sont obtenus sous forme de films de quelques microns d'épaisseur déposés sur des substrats, et les mesures de PL sont effectuées à l'air à température ambiante. En revanche, les poussières de carbones amorphes hydrogénés du milieu interstellaires, même si nous ne connaissons pas vraiment sous quelle forme elles se présentent, existent dans des conditions (taille, forme, température, pression, champ de rayonnement, ...) différentes de celles de nos expériences de laboratoire. Par conséquent, ces différences peuvent peut-être avoir une influence sur les propriétés de PL des a-C:H, et nous devons nous interroger pour savoir dans quelle mesure il est possible de comparer les propriétés de PL des a-C:H mesurées en laboratoire à celles dans des conditions interstellaires.

#### Géométrie et taille

En prenant en compte les effets optiques décrits dans la section 7.3.1 et dans l'annexe A.2, nous avons obtenu les propriétés intrinsèques de PL des a-C:H, et nous nous sommes donc affranchis des effets dus à la géométrie de nos échantillons et à la configuration de nos expériences.

[Mallocci *et al.* 2004] et [Mulas *et al.* 2004] ont soulevé le problème de la comparaison directe des mesures de PL en laboratoire (sans prise en compte de la forme des échantillons, comme c'est souvent le cas) aux observations de l'ERE, et se sont intéressés aux effets de la



géométrie et de la taille des grains de poussières sur l'ERE que l'on détecte. Ils ont modélisé les modifications entre la PL mesurée en laboratoire à partir d'échantillons et la PL produite par une distribution de taille de poussières sphériques et homogènes. Comme nous l'avons fait, ils ont modélisé la photoluminescence par l'émission d'un ensemble de dipôles électriques incohérents et non polarisés dans le cadre de l'approximation locale, c'est-à-dire en considérant que l'énergie d'excitation est absorbée localement et que la PL qui en résulte est émise par la zone où l'absorption s'est produite. Cela semble être une approximation raisonnable pour les a-C:H puisque leur PL semble être produite par les groupements de sites  $sp^2$  confinés dans la matrice  $sp^3$  [Demichelis *et al.* 1995, Robertson 1996, Heitz *et al.* 1999]. [Mulas *et al.* 2004] ont appliqué leur modèle à des particules de carbones amorphes hydrogénés, et ont discuté les implications astrophysiques concernant l'émission rouge étendue. Ils ont montré que les effets de géométrie et de taille ont une influence sur la PL apparente qui résulte de petits grains interstellaires. Le spectre de PL est modifié par l'auto-absorption aux courtes longueurs d'onde lorsque les particules ne sont pas trop petites. Différentes distributions de tailles donnent lieu à un décalage de la bande de PL vers le rouge plus ou moins important. Ces modifications de la PL de la poussière existent et dépendent de la distribution de taille des grains et de l'angle entre les directions d'excitation et d'émission. Les conséquences sur l'interprétation de l'émission rouge étendue sont diverses. Premièrement, une variation de la distribution de taille d'un même porteur entre différents endroits (au sein d'un même objet astrophysique ou bien entre différentes sources interstellaires) pourrait suffire à expliquer les variations des propriétés de l'ERE. Ensuite, l'ERE pourrait apparaître plus rouge que la PL intrinsèque de ses porteurs. Ce rougissement apparent pourrait être plus ou moins important selon la distribution de taille des porteurs de l'ERE. Pour une taille de grain donnée, l'auto-absorption est moins importante lorsque le gap augmente car le recouvrement entre les bandes d'émission et d'absorption est alors plus faible. Par conséquent, à cause de l'auto-absorption, plus la PL intrinsèque des a-C:H est rouge, plus le décalage de la PL de ces matériaux sous forme de grains vers les plus grandes longueurs d'onde sera important.

## Température

Les mesures de PL ont été effectuées à température ambiante. En effet, la PL des a-C:H ne dépend que très peu de la température, contrairement aux a-Si:H dont la photoluminescence est très fortement réduite (de plus de quatre ordres de grandeurs) à température ambiante par rapport à 50 K [Chernyshov *et al.* 1991]. Ainsi, puisque l'on s'attend à ce que la température du milieu interstellaire n'ait qu'un impact mineur sur la PL produite par des poussières de carbones amorphes hydrogénés, les mesures effectuées à température ambiante paraissent justifiées. Il semble important cependant de discuter le faible effet sur la PL d'une température plus basse. [Watanabe *et al.* 1982], [Lin & Feldman 1983], [Chernyshov *et al.* 1991], et [Xu *et al.* 1993] ont observé une faible augmentation de l'intensité de PL des a-C:H lorsque la température baisse. Une augmentation de l'intensité par un facteur deux environ est observée lorsque la température passe de 350 K à 2 K, sauf pour l'un des échantillon de [Xu *et al.* 1993] pour lequel l'augmentation du rendement entre 300K et 120K est d'un facteur dix. [Xu *et al.* 1993] ont



observé que cette augmentation du rendement de PL n'affecte pas tous les a-C:H de la même façon, et s'accompagne d'une réduction des effets de fatigue de la PL à basse température. [Chernyshov *et al.* 1991] ont aussi remarqué un léger étrécissement de la bande de PL à basse température, qui n'a cependant pas été observé par les autres auteurs [Watanabe *et al.* 1982, Lin & Feldman 1983, Chernyshov *et al.* 1991]. Ainsi, on peut s'attendre à ce que les propriétés de PL des a-C:H, mesurée en laboratoire à température ambiante, ne soient que légèrement modifiées à plus basse température. L'éventuelle différence pouvant apparaître à basse température est une augmentation de quelques unités du rendement de PL. Ces mesures à basses températures sont dans la continuité de ce travail et seront effectuées prochainement.

### 7.5.6 Résumé de la comparaison entre la PL des a-C:H et l'ERE

Les a-C:H sont des constituants abondants parmi les poussières interstellaires dont les signatures spectrales (les bandes d'absorption à 3.4, 6.85, et 7.25 microns) sont largement observées dans le milieu interstellaire diffus. Ces matériaux produisent une photoluminescence visible qui couvre une large gamme de caractéristiques spectrales (position, largeur et intensité de la bande de PL) en réponse à différentes conditions de production. Cette variation des propriétés de PL des a-C:H est en bon accord avec les variations spectrales de l'ERE d'un environnement interstellaire à l'autre et au sein d'un même objet astrophysique couvrant différentes conditions interstellaires (densité et dureté du rayonnement, température, etc.). De plus, la bande de PL des a-C:H s'élargit en même temps qu'elle se décale vers les plus grandes longueurs d'onde; le même comportement est observé pour l'ERE. Une autre corrélation est aussi observée aussi bien pour la PL des a-C:H que pour l'ERE : les rendements de PL des a-C:H et de l'ERE diminuent lorsque l'émission se décale vers le rouge. Les forts rendements de l'ERE, estimés en considérant que l'absorption du rayonnement sur toute la gamme spectrale entre 91 et 540 nm contribue à l'excitation de l'ERE, nécessitent que les matériaux produisant l'ERE soient capables d'absorber et de transformer en PL une grande partie du rayonnement de cette large gamme spectrale. Nous avons montré que pour les a-C:H, au moins l'UV proche et le visible du spectre d'excitation donnent lieu à une photoluminescence efficace. Jusqu'à des énergies d'excitation de 5 eV au moins, le rendement de PL ne s'affaiblit pas. Il faudrait maintenant explorer des énergies d'excitation plus fortes, mais nous avons montré que l'UV proche et le visible semblent être responsables de la majorité des photons excitateurs de l'ERE.

Cependant, les caractéristiques de PL des a-C:H ne semblent pas correspondre complètement à celles estimées à partir des observations de l'ERE. Le spectre de PL des échantillons d'a-C:H que nous avons produits est légèrement trop large, ou bien a lieu à des longueurs d'onde trop courtes pour correspondre totalement aux observations de l'ERE. Les rendements quantiques de PL que l'on a déterminés pour les a-C:H sont compatibles avec la plupart des limites sur le rendements de l'ERE, mais ne le sont pas avec la plus haute valeur de rendement de 10%, estimée à partir de l'observation difficile de l'ERE du MIS diffus. De plus, les rendements de PL des a-C:H les plus forts correspondent aux émissions aux plus courtes longueurs d'onde. Par conséquent, il semble difficile pour les a-C:H que nous produisons de satisfaire

simultanément les spectres et les forts rendements de l'ERE.

Néanmoins, plusieurs effets comme la fatigue de la PL, le probable affaiblissement du rendement de PL par le contenu en oxygène apportés aux a-C:H pendant leur production ou par oxydation après leur production, l'influence de la température lors des mesures de PL, et la géométrie et la taille des grains de poussières responsables de l'ERE modifient plus ou moins les propriétés de PL. De plus, tous ces effets semblent affecter les caractéristiques de PL de façon à ce que l'écart entre l'émission par les a-C:H et les observations de l'ERE se réduise. Il apparait donc nécessaire de mieux contraindre l'influence de chacun de ces effets afin d'obtenir une réponse complète et définitive à la question : est-ce que les a-C:H interstellaires participent à l'émission rouge étendue ?

## 7.6 Conclusion

Nous avons réalisé les premières mesures des rendements quantiques absolus de la photoluminescence des a-C:H, en fonction de la longueur d'onde d'excitation. Afin d'obtenir le rendement *intrinsèque* et *absolu* de photoluminescence, nous avons pris en compte les effets optiques engendrés par la géométrie de l'échantillon. Nous avons établi un lien entre les variations des propriétés de PL (rendement, longueur d'onde centrale et largeur de la bande) et l'énergie du gap optique, caractérisant l'a-C:H produit. Ces propriétés ont été comparées aux observations de l'émission rouge étendue du milieu interstellaire.

La distribution des propriétés de PL des a-C:H couvre une large gamme spectrale, probablement plus large encore que celle explorée par les a-C:H que nous avons produits. Cette bande s'élargit lorsque la PL se déplace vers les plus grandes longueurs d'onde (Fig. 7.17), tendance qui est également observée pour l'ERE. Quelques mesures de PL d'a-C:H recouvrent certaines observations de l'ERE, cependant des a-C:H ayant une PL plus rouge permettraient un meilleur accord avec les propriétés de l'ERE.

Le rendement absolu augmente avec l'énergie du gap (Fig. 7.11), et donc avec l'inverse de la longueur d'onde centrale de la bande de PL. Cette tendance est également observée pour l'ERE (Fig. 7.18). Un meilleur accord serait observé si les rendements de l'ERE étaient un ou deux ordres de grandeur plus bas.

Pour un a-C:H donné, le spectre de photoluminescence (longueur d'onde centrale et largeur), ainsi que le rendement, restent approximativement constants pour différentes longueurs d'onde d'excitation dans le domaine optique ou UV proche (Figs. 7.15 et 7.16). Cette large bande d'absorption des a-C:H est une caractéristique favorable pour pouvoir satisfaire les forts rendements de l'ERE. Les photons du visible et de l'UV proche semblent être ceux responsables en majorité de l'excitation donnant lieu à l'ERE.

Depuis sa première détection en 1975 et depuis lors, l'ERE reste une des signatures spectrales observées dont l'origine n'est toujours pas résolue. Aucun matériau ne semble satisfaire complètement les contraintes observationnelles requises pour correspondre à l'ERE. Les carbones amorphes hydrogénés semblent également avoir quelques difficultés à simultanément

atteindre les hauts rendements de PL et satisfaire les caractéristiques spectrales de l'ERE. Cependant, il semble que plusieurs effets, tels que la forme et la taille des grains de poussière interstellaire par exemple, pourraient modifier les propriétés de PL et mieux faire correspondre la PL des a-C:H avec l'ERE.

La plus grande contrainte astrophysique apportée par les observations de l'ERE concerne l'évaluation des rendements de PL. De grandes incertitudes existent cependant toujours sur l'évaluation des photons réellement absorbés par les porteurs de l'ERE. Celles-ci reposent aujourd'hui sur les propriétés de diffusion supposées des grains. D'un point de vue expérimental, quelques points seront abordés plus en détails à l'avenir, comme le comportement du rendement de PL à basse température et la relation liant la quantité d'atomes d'oxygène présents dans la structure des a-C:H avec la diminution de PL.



# Evolution des a-C:H sous l'effet des rayons cosmiques

## Sommaire

<b>8.1</b>	<b>Introduction</b>	<b>159</b>
<b>8.2</b>	<b>Experiences</b>	<b>161</b>
8.2.1	Echantillons étudiés	161
8.2.2	Irradiation des échantillons	163
<b>8.3</b>	<b>Déshydrogénation induite par l'irradiation</b>	<b>168</b>
8.3.1	Le modèle de recombinaison	168
8.3.2	Sections efficaces de destruction	173
8.3.3	Contenu en hydrogène résiduel et volume de recombinaison	177
<b>8.4</b>	<b>Autres modifications observées des a-C:H irradiés</b>	<b>180</b>
<b>8.5</b>	<b>Implications astrophysiques concernant la déshydrogénation</b>	<b>184</b>
8.5.1	Flux interstellaire des rayons cosmiques	184
8.5.2	Taux d'ionisation	186
8.5.3	Taux de destruction	187
8.5.4	Evolution des C-H aliphatiques interstellaires due aux rayons cosmiques	188
8.5.5	Contribution des ions lourds	190
8.5.6	Implications d'un fort taux d'ionisation	191
8.5.7	Evolution entre les phases diffuses et denses du milieu interstellaire	192
<b>8.6</b>	<b>Conclusion</b>	<b>197</b>

## 8.1 Introduction

La poussière interstellaire est continuellement en interaction avec son environnement. Sa composition et sa structure peuvent être en partie forgées par des processus énergétiques comme le passage d'ondes de choc, l'exposition à de fortes températures, à des atomes d'hydrogène, aux photons UV, ou encore aux rayons cosmiques. Dans chaque environnement, un équilibre existe entre ces processus menant à la formation ou à la destruction de la poussière. Les expériences

de laboratoire, cherchant à reproduire ces différentes altérations dans des conditions s'approchant de celles du MIS, peuvent permettre de mieux comprendre l'évolution des poussières, notamment observée au travers des modifications des signatures spectrales entre les phases diffuses et denses du milieu interstellaire. Le domaine infrarouge est particulièrement adapté pour tracer ces modifications de composition et de structure des poussières interstellaires.

Nous avons vu dans le chapitre 3 que, bien que la poussière évolue rapidement d'une phase interstellaire diffuse à un nuage dense, les carbones amorphes hydrogénés, largement observés dans le MIS diffus, ne sont pourtant pas détectés dans les nuages denses. Dans ces environnements moléculaires, dans la gamme spectrale de la bande à  $3.4\ \mu\text{m}$ , en sus du mode d'élongation C-H du méthanol à  $3.53\ \mu\text{m}$  parfois présent, on observe une large bande sans structure centrée à  $3.47\ \mu\text{m}$  que nous avons déjà évoquée dans ce manuscrit et dont la forme est très différente de celle associée aux a-C:H (cf. Fig. 3.5 pour une comparaison entre ces deux bandes d'absorption). Le fait que la bande à  $3.4\ \mu\text{m}$  soit largement répandue dans le MIS diffus, et semble disparaître ou se transformer dans les régions denses impose des contraintes pour expliquer la formation et l'évolution de la composante aliphatique de la poussière carbonée. Les processus d'altération interstellaires et leurs effets doivent donc être bien compris pour pouvoir interpréter les observations.

L'irradiation par les rayons cosmiques (CR pour *Cosmic Rays*) de la poussière interstellaire est un des processus connus pour détruire les liaisons C-H aliphatiques, et donc provoquer une diminution de la profondeur optique de la bande à  $3.4\ \mu\text{m}$ . Différentes études expérimentales portent sur les effets d'irradiation de carbones amorphes hydrogénés et d'autres matériaux hydrocarbonés par des ions énergétiques (e.g. [Baumann *et al.* 1987, Prawer *et al.* 1987, González-Hernández *et al.* 1988, Fujimoto *et al.* 1988, Ingram & McCormick 1988, Zou *et al.* 1988, Adel *et al.* 1989, Marée *et al.* 1996, Pawlak *et al.* 1997, Som *et al.* 1999, Mennella *et al.* 2003, Baptista *et al.* 2004, Som *et al.* 2005, Brunetto *et al.* 2009]). Pour suivre les modifications du matériau irradié, différentes méthodes de diagnostic sont utilisées, comme la spectroscopie infrarouge, la spectroscopie Raman, ou bien des techniques permettant de mesurer la concentration en hydrogène. Ces études montrent que les irradiations induisent une diminution de la profondeur optique des bandes caractéristiques des liaisons C-H aliphatiques et de la quantité d'hydrogène dans le matériau.

Les implications astrophysiques d'expériences d'irradiation d'analogues interstellaires par des ions, concernant l'évolution des porteurs de la bande à  $3.4\ \mu\text{m}$ , ont été discutées par [Mennella *et al.* 2003]. Les auteurs ont irradié des grains hydrocarbonés avec des ions  $\text{He}^+$  de 30 keV. Les effets de l'ensemble des éléments et énergies des rayons cosmiques ont été extrapolés à partir des mesures faites avec les ions d'hélium d'énergie modérée, en faisant l'approximation des protons à 1 MeV pour laquelle on considère que l'ensemble des rayons cosmiques peut être représenté par des protons ayant une énergie de 1 MeV.

Le but de ce travail est d'étudier en détails les effets des rayons cosmiques sur les a-C:H interstellaires et leurs signatures spectrales, en analysant les résultats d'expériences d'irradiation d'analogues par une large gamme d'ions énergétiques. Ces travaux sont le résultat d'une collaboration entre l'Institut de Physique Nucléaire d'Orsay (IPNO), l'Institut d'Astrophysique

Spatiale (IAS), l'Institut des Sciences Moléculaires d'Orsay (ISMO) et le Centre de Spectroscopie Nucléaire et de Spectroscopie de Masse (CSNSM), et ont fait l'objet d'un article publié dans le journal *Astronomy & Astrophysics* en mai 2011 [Godard *et al.* 2011a]. Dans ce chapitre, le §8.2 présente les différents analogues hydrocarbonés qui ont été étudiés, ainsi que les expériences d'irradiation que nous avons menées. Les résultats obtenus concernant la déshydrogénation des matériaux irradiés sont présentés et analysés dans le §8.3. La section 8.4 abordera brièvement les autres modifications induites par les irradiations et observées au travers des spectres IR. Les conséquences astrophysiques de la déshydrogénation des matériaux irradiés sont estimées et discutées dans le §8.5. Les conclusions de ce travail sont récapitulées dans le §8.6.

## 8.2 Experiences

### 8.2.1 Echantillons étudiés

Deux types de matériaux carbonés ont été étudiés lors de ces expériences d'irradiation : des carbones amorphes hydrogénés produits à l'IAS (cf. chapitre 5) et des suies produites à l'ISMO. Les échantillons sont déposés sur des substrats de KBr ou de KCl. Deux types d'a-C:H différents sont irradiés : les a-C:H 1 et a-C:H 2 sont respectivement produits à partir d'un plasma de méthane ou de butadiène, et sont de couleur jaune ou orange-marron. Tous ces échantillons présentent des bandes d'absorption à 3.4, 6.85 et 7.25  $\mu\text{m}$ , caractéristiques des élongations et des pliages des liaisons C-H aliphatiques. Parmi les a-C:H, les a-C:H 1 reproduisent particulièrement bien la structure des poussières aliphatiques observées dans le MIS diffus (cf. Fig. 6.11). Le fait d'utiliser différents matériaux hydrocarbonés lors de ces expériences permet de tester la sensibilité des résultats aux différentes structures aliphatiques et aromatiques sous-jacentes.

Les suies sont produites par Géraldine Féraud, Yvain Carpentier et Thomas Pino grâce à l'expérience "Nanograins" à l'ISMO. Ces matériaux résultent des réactions de combustion incomplète dans une flamme plate de pré-mélange, basse pression (70 mbar). Cette flamme permet la nucléation d'espèces aromatiques de tailles variées, des molécules PAH jusqu'aux particules de suies. Le type de suie étudié ici est produit en brûlant du propylène avec du dioxygène. Un substrat est placé en face de la flamme, après un cône d'extraction et permet de recueillir la phase condensable. Les suies obtenues forment un dépôt homogène et plus ou moins sombre, de quelques microns d'épaisseur. Une description plus détaillée peut être trouvée dans [Pino *et al.* 2008] et dans la thèse d'Yvain Carpentier [Carpentier 2009].

Pour la suite de ce travail, on utilisera les caractéristiques estimées pour ces deux grandes familles de matériaux, données dans le tableau 8.1. Les estimations des propriétés des a-C:H sont expliquées dans la section 6.4. Des mesures élémentaires par combustion ont permis de déterminer le rapport H/C des suies. Leur indice est estimé grâce à [Bond & Bergstrom 2006].



Type d'échantillon	H/C	Masse volumique $\rho_M$ ( $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$ )	Indice $n$
a-C:H	1	$\sim 1.2$	$\sim 1.5$
Suie	$10^{-2}$	$\sim 1.8$	$\sim 1.8$

TABLE 8.1 – Caractéristiques des échantillons avant irradiation.

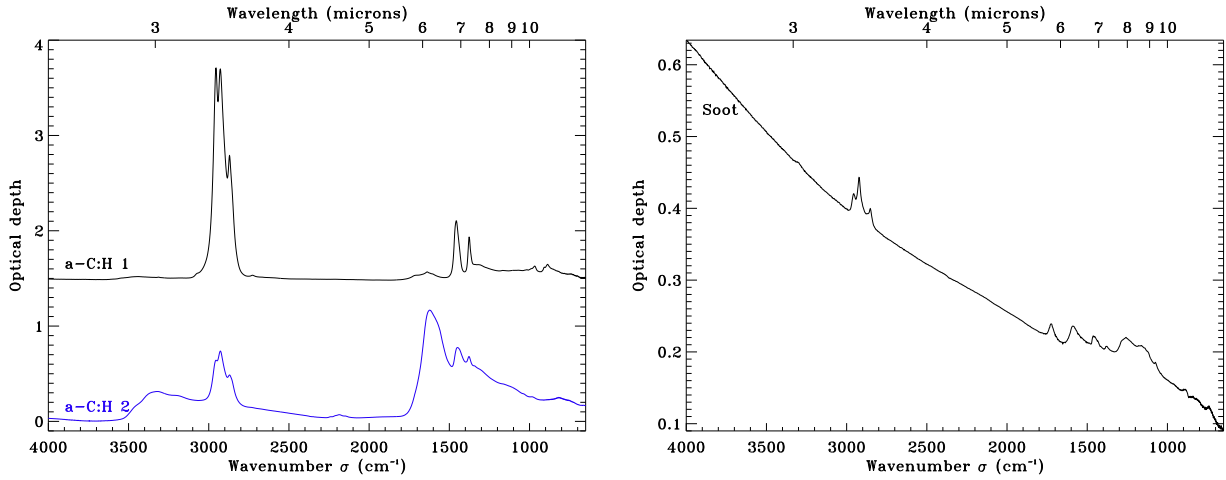


FIGURE 8.1 – Spectres IR des différents types d'échantillons étudiés (avant irradiation). *A gauche* : profondeur optique d'un échantillon d'a-C:H 1 (en noir, pour une épaisseur  $H \approx 10\mu\text{m}$ , décalé verticalement de 1.5) et d'un échantillon d'a-C:H 2 (en bleu, pour une épaisseur  $H \approx 7\mu\text{m}$ ). *A droite* : profondeur optique d'un échantillon de suie (d'épaisseur  $H \approx 5\mu\text{m}$ ).

Les différences de structure entre ces trois types d'échantillons (a-C:H 1, a-C:H 2, suie) se traduisent notamment par différents spectres infrarouges présentés sur la Fig. 8.1. Les a-C:H 1 possèdent une importante quantité d'hydrogène et de carbone aliphatique. Les a-C:H 2 ont une structure un peu différente, avec plus de liaisons oléfiniques, un rapport  $\text{sp}^2/\text{sp}^3$  plus haut, une concentration en hydrogène plus faible, et un gap plus faible que pour les a-C:H 1 (nous avons vu dans le chapitre précédent que ces matériaux diffèrent aussi par leurs propriétés de photoluminescence). Les suies sont des matériaux qui reproduisent une phase carbonée plus aromatique de la poussière interstellaire. Ces échantillons ne contiennent que très peu d'hydrogène, et sont composés de structures poly-aromatiques reliées entre-elles par des chaînes aliphatiques. Les liaisons  $\text{sp}^2$  dominent donc largement la structure. Contrairement aux a-C:H, les suies étudiées présente un continuum d'absorption, dû à des transitions électroniques de basse énergie.

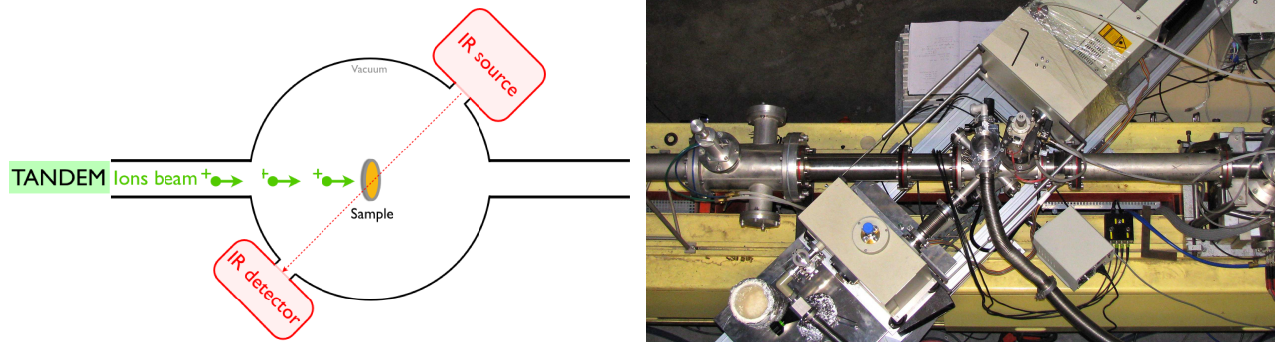


FIGURE 8.2 – Schéma et photo du montage expérimental au TANDEM. Le spectromètre FTIR est couplé à la ligne d'irradiation du TANDEM.

### 8.2.2 Irradiation des échantillons

Les irradiations ioniques de ces échantillons ont été effectuées à température ambiante, avec différents ions et énergies accélérés par le Tandem de l'IPNO en mars 2009 (avec des ions  $H^+$  de 10 MeV,  $C^{5+}$  de 50 MeV,  $Si^{7+}$  de 85 MeV, et  $Ni^{9+}$  de 100 MeV) et en février 2010 (avec des ions  $He^{2+}$  de 20 MeV,  $C^{6+}$  de 91 MeV, et  $I^{12+}$  de 160 MeV). Une série d'irradiations à plus basses énergies a été effectuée au laboratoire d'astrophysique expérimentale (INAF-Catane, Italie) en octobre 2007 et février 2009 (avec des ions  $H^+$  de 200 keV,  $He^+$  de 200 keV, et  $Ar^{2+}$  de 400 keV). Les échantillons ont été respectivement irradiés sur une surface circulaire de 5 mm et 1.5 cm de diamètre à Orsay et à Catane.

Pour les irradiations effectuées au Tandem, les échantillons ont été placés dans une chambre sous vide (quelques  $10^{-7}$  mbar), perpendiculaires au faisceau d'ions. Les spectres d'absorption IR des échantillons ont été mesurés pendant les irradiations par un spectromètre FTIR Bruker vector 22, entre 6000 et 600  $cm^{-1}$  avec une résolution de 2  $cm^{-1}$ . Le temps d'acquisition d'un spectre durait entre 5 et 10 min. Le faisceau IR formait un angle de  $45^\circ$  avec la normale de l'échantillon (Fig. 8.2).

La configuration des expériences à Catane était similaire, mais les deux faisceaux (d'ions et IR) étaient à  $45^\circ$  par rapport à la normale de l'échantillon [Strazzulla *et al.* 2001]. La pression typique pendant les irradiations est aussi de  $10^{-7}$  mbar. Les spectres IR sont enregistrés entre 8000 et 400  $cm^{-1}$  avec une résolution de 1  $cm^{-1}$ .

Les différents ions/énergies permettent d'explorer une large gamme de pouvoirs d'arrêt  $S = S_e + S_n$ , où  $S_e$  et  $S_n$  sont respectivement les pouvoirs d'arrêt électronique et nucléaire.  $S_e$  désigne plus précisément le pouvoir d'arrêt de masse électronique (*electronic stopping cross section* en anglais), et est défini comme le pouvoir d'arrêt linéaire électronique  $dE/dx$  (c'est-à-dire l'énergie déposée par l'ion aux électrons de la cible par unité de longueur traversée,

Echantillon	Ion	E (MeV)	Expérience	$S_e$ (MeV/(mg/cm <sup>2</sup> ))	$S_n/S_e$	$R_p$ ( $\mu$ m)	$H$ ( $\mu$ m)	$\Phi_I$ (ions cm <sup>-2</sup> s <sup>-1</sup> )	$\Phi_E$ (MeV mg <sup>-1</sup> s <sup>-1</sup> )	$T_{irr}$ (heures)	$F_{I,max}$ (ions cm <sup>-2</sup> )	$F_{E,max}$ (MeV mg <sup>-1</sup> )
a-C:H 1	H <sup>+</sup>	0.2	Catane 2009	7.092 10 <sup>-1</sup>	1.1 10 <sup>-3</sup>	1.46*	≈ 0.9	2 10 <sup>12</sup>	1 10 <sup>12</sup>	0.6	4 10 <sup>15</sup>	2.8 10 <sup>15</sup>
a-C:H 1	He <sup>+</sup>	0.2	Catane 2009	1.886	5.4 10 <sup>-3</sup>	0.933*	≈ 0.9	6 10 <sup>11</sup>	1 10 <sup>12</sup>	1.9	4 10 <sup>15</sup>	7.5 10 <sup>15</sup>
a-C:H 1	Ar <sup>2+</sup>	0.4	Catane 2009	5.001	3.3 10 <sup>-1</sup>	0.363*	≈ 0.6	6 10 <sup>11</sup>	3 10 <sup>12</sup>	0.9	2 10 <sup>15</sup>	1 10 <sup>16</sup>
a-C:H 1	H <sup>+</sup>	10	Tandem 2009	4.580 10 <sup>-2</sup>	5.5 10 <sup>-4</sup>	1010	≈ 7	1.4 10 <sup>11</sup>	6.4 10 <sup>9</sup>	4.0	2.1 10 <sup>15</sup>	9.6 10 <sup>13</sup>
a-C:H 1	H <sup>+</sup>	10	Tandem 2009	4.580 10 <sup>-2</sup>	5.5 10 <sup>-4</sup>	1010	≈ 10	0.7-1.2 10 <sup>12</sup>	3.2-5.5 10 <sup>10</sup>	6.1	2.0 10 <sup>16</sup>	9.1 10 <sup>14</sup>
a-C:H 1	He <sup>2+</sup>	20	Tandem 2010	3.207 10 <sup>-1</sup>	5.9 10 <sup>-4</sup>	296.48	≈ 11	1.2-1.9 10 <sup>10</sup>	3.9-6.1 10 <sup>10</sup>	5.7	3.0 10 <sup>14</sup>	9.7 10 <sup>13</sup>
a-C:H 1	C <sup>6+</sup>	91	Tandem 2010	2.07	5.4 10 <sup>-4</sup>	213.67	≈ 6	2.3-12 10 <sup>10</sup>	4.8-25 10 <sup>10</sup>	15.7	2.3 10 <sup>15</sup>	4.8 10 <sup>15</sup>
a-C:H 1	C <sup>5+</sup>	50	Tandem 2009	3.274	5.7 10 <sup>-4</sup>	82.66	≈ 12	1.5-7.5 10 <sup>10</sup>	0.5-2.5 10 <sup>11</sup>	5.3	8.2 10 <sup>14</sup>	2.7 10 <sup>15</sup>
a-C:H 1	Si <sup>7+</sup>	85	Tandem 2009	15.91	7.9 10 <sup>-4</sup>	36.97	≈ 6	0.5-2.3 10 <sup>10</sup>	0.8-3.7 10 <sup>11</sup>	3.5	1.0 10 <sup>14</sup>	1.6 10 <sup>15</sup>
a-C:H 1	Ni <sup>9+</sup>	100	Tandem 2009	46.98	1.6 10 <sup>-3</sup>	24.31	≈ 6	1.2 10 <sup>10</sup>	5.6 10 <sup>11</sup>	1.2	5.4 10 <sup>13</sup>	2.5 10 <sup>15</sup>
a-C:H 1	I <sup>12+</sup>	160	Tandem 2010	89.33	3.5 10 <sup>-3</sup>	25.39	≈ 6	1.6-3.6 10 <sup>8</sup>	1.4-3.2 10 <sup>10</sup>	6.3	4.9 10 <sup>12</sup>	4.4 10 <sup>14</sup>
a-C:H 2	He <sup>2+</sup>	20	Tandem 2010	3.207 10 <sup>-1</sup>	5.9 10 <sup>-4</sup>	296.48	≈ 7	0.9-1.3 10 <sup>10</sup>	2.9-4.2 10 <sup>10</sup>	4.5	1.9 10 <sup>14</sup>	6.0 10 <sup>14</sup>
a-C:H 2	C <sup>6+</sup>	91	Tandem 2010	2.07	5.4 10 <sup>-4</sup>	213.67	≈ 7	2.2-4.5 10 <sup>10</sup>	4.6-9.3 10 <sup>10</sup>	5.4	6.0 10 <sup>14</sup>	1.3 10 <sup>15</sup>
a-C:H 2	I <sup>12+</sup>	160	Tandem 2010	89.33	3.5 10 <sup>-3</sup>	25.39	≈ 5	1.9-2.5 10 <sup>8</sup>	1.7-2.2 10 <sup>10</sup>	2.3	1.4 10 <sup>12</sup>	1.2 10 <sup>14</sup>
Suie	H <sup>+</sup>	0.2	Catane 2007	5.909 10 <sup>-1</sup>	1.0 10 <sup>-3</sup>	1.21*	≈ 5	2.5 10 <sup>12</sup>	1.5 10 <sup>12</sup>	0.2	2 10 <sup>15</sup>	1.2 10 <sup>15</sup>
Suie	He <sup>+</sup>	0.2	Catane 2009	1.588	5.0 10 <sup>-3</sup>	0.704*	≈ 0.8	1 10 <sup>12</sup>	2 10 <sup>12</sup>	0.9	3.4 10 <sup>15</sup>	5.4 10 <sup>15</sup>
Suie	H <sup>+</sup>	10	Tandem 2009	4.109 10 <sup>-2</sup>	4.8 10 <sup>-4</sup>	758.01	≈ a few	5.3-9.7 10 <sup>11</sup>	2.2-4.0 10 <sup>10</sup>	4.5	1.1 10 <sup>16</sup>	4.6 10 <sup>14</sup>
Suie	C <sup>5+</sup>	50	Tandem 2009	2.864	5.3 10 <sup>-4</sup>	64.85	≈ 4	2.3-5.7 10 <sup>10</sup>	6.6-16 10 <sup>10</sup>	1.9	2.7 10 <sup>14</sup>	7.8 10 <sup>14</sup>
Suie	Si <sup>7+</sup>	85	Tandem 2009	13.7	7.5 10 <sup>-4</sup>	29.35	≈ 5	0.9-2.3 10 <sup>10</sup>	1.2-3.2 10 <sup>11</sup>	1.4	7.8 10 <sup>13</sup>	1.1 10 <sup>15</sup>
Suie	Ni <sup>9+</sup>	100	Tandem 2009	39.35	1.6 10 <sup>-3</sup>	19.35	≈ 3	1.2 10 <sup>10</sup>	4.7 10 <sup>11</sup>	0.6	2.5 10 <sup>13</sup>	9.9 10 <sup>14</sup>

\* Les profondeurs de pénétration des expériences à Catane, où l'angle d'incidence des ions est  $\alpha_{ion} = 45^\circ$ , ont été multipliées par  $\cos \alpha_{ion}$  afin de prendre en compte l'épaisseur de l'échantillon effective (dans la direction du faisceau d'ions).

TABLE 8.2 – **Expériences d'irradiation ionique d'analogues interstellaires.** Les différents échantillons irradiés avec des ions et énergies  $E$  variés sont indiqués. Les valeurs correspondantes des pouvoirs d'arrêt électroniques  $S_e$ , des rapport entre pouvoirs d'arrêt nucléaire et électronique  $S_n/S_e$ , la profondeur de pénétration  $R_p$ , et les épaisseurs des échantillons  $H$  sont aussi données dans ce tableau. Pour chaque expérience, on reporte les gammes des flux d'ions et d'énergie  $\Phi_I$  et  $\Phi_E$ , les temps d'irradiation  $T_{irr}$ , les fluences maximales atteintes en terme de nombre d'ions  $F_{I,max}$  et d'énergie reçue  $F_{E,max}$ .

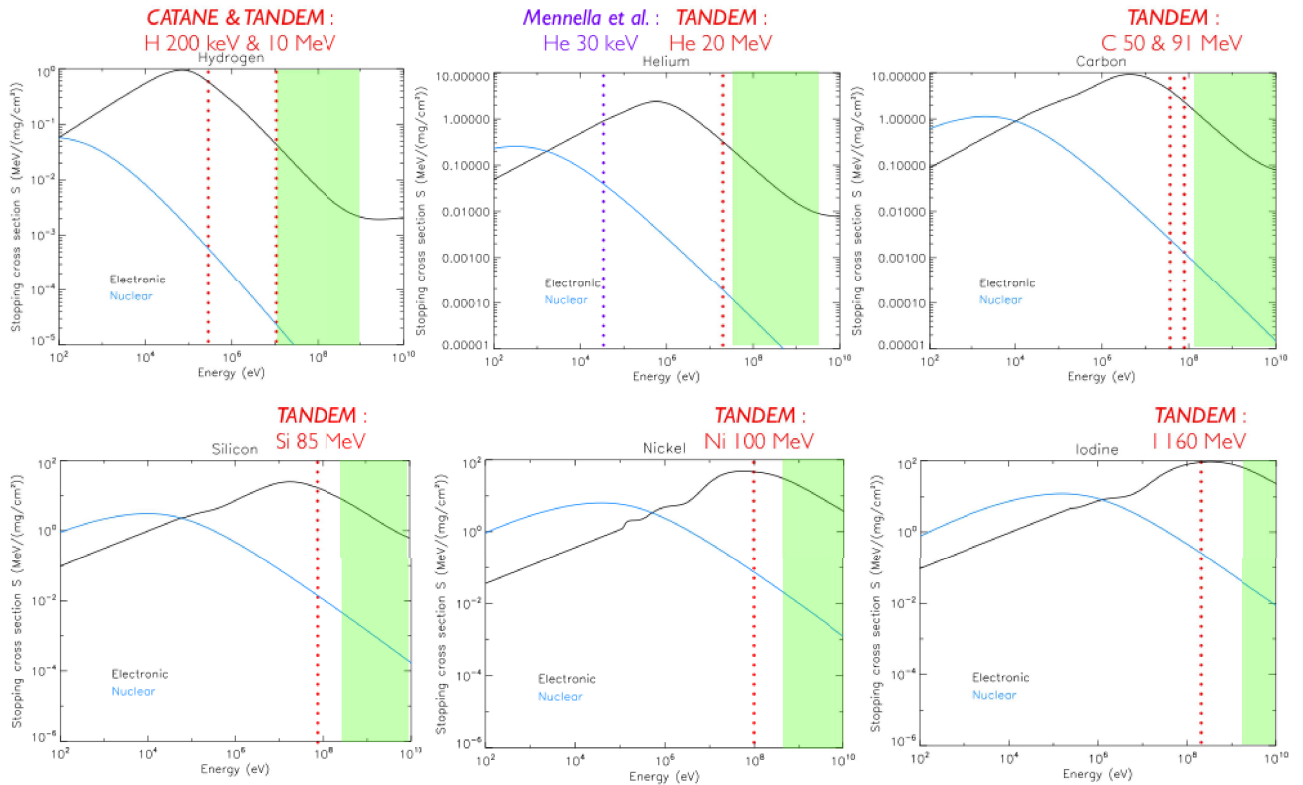


FIGURE 8.3 – **Courbe de Bragg des ions utilisés lors des irradiations.** Les courbes noires donnent les valeurs du pouvoir d'arrêt électronique  $S_e$ , tandis que  $S_n$  est représenté en bleu. Les droites en pointillés rouges indiquent les énergies de chaque ion utilisé lors de nos expériences d'irradiation. Pour comparaison, la droite en pointillés violets correspond à l' $\text{He}^+$  de 30 keV utilisé par [Mennella *et al.* 2003]. Les zones vertes indiquent les énergies où le flux de rayons cosmiques de l'élément indiqué est le plus fort, c'est-à-dire entre 10 MeV/nucléon et 1 GeV/nucléon.

*electronic stopping power* en anglais) divisé par la masse volumique de la cible.  $S_e$  s'exprime généralement en  $\text{MeV}/(\text{mg}/\text{cm}^2)$ , alors que  $dE/dx$  est donné en  $\text{MeV}/\text{mm}$ . Dans la suite, nous utiliserons les pouvoirs d'arrêt massiques. Lorsque la vitesse des ions est grande (comme c'est le cas pour les rayons cosmiques), le pouvoir d'arrêt électronique est dominant par rapport au pouvoir d'arrêt nucléaire. Pour chaque expérience, les valeurs de  $S_e$  et  $S_n$  sont calculées en utilisant le logiciel SRIM (*the Stopping and Range of Ions in Matter*) [Ziegler *et al.* 2010] et sont indiquées dans le Tableau 8.2. Pour un matériau cible (caractérisé par son rapport H/C et sa masse volumique) et un ion projectile donnés, le code SRIM permet d'obtenir, en fonction de l'énergie de l'ion, les valeurs de  $S_e$ ,  $S_n$  et de la profondeur de pénétration  $R_p$ , c'est-à-dire la longueur parcouru par l'ion dans le matériau cible avant qu'il ne s'implante. Les variations des pouvoirs d'arrêt d'un ion en fonction de son énergie (courbes de Bragg) sont représentées, pour les ions que nous avons utilisés, sur la Fig. 8.3. On remarque que le pouvoir d'arrêt électronique

passé par un maximum, le pic de Bragg, pour une énergie autour de 0.1-1 MeV/nucléon (le maximum de  $S_n$  se situe autour de 100 eV/nucléon), et que l'énergie transférée aux atomes de la cible, représentée par  $S_n$ , devient significative seulement aux faibles énergies.

Dans le tableau 8.2 sont aussi reportées les valeurs de  $\Phi_I$  (le flux d'ions a été contrôlé à de nombreuses reprises au cours des expériences) et de la fluence maximale  $F_{I,max}$  (de  $10^{12}$  à  $10^{16}$  ions  $\text{cm}^{-2}$ ) atteinte en quelques heures d'irradiation. Les flux d'énergie  $\Phi_E$  et énergie totale déposée  $F_{E,max}$  correspondants sont calculés en multipliant  $\Phi_I$  et  $F_{I,max}$  par  $S_e$ . Chaque échantillon a reçu entre  $10^9$  et quelques  $10^{12}$  MeV  $\text{mg}^{-1} \text{s}^{-1}$  et une énergie totale allant de  $10^{14}$  MeV  $\text{mg}^{-1}$  à  $10^{16}$  MeV  $\text{mg}^{-1}$ . Les flux d'ions que nous avons utilisés pour ces expériences s'étalent entre  $10^8$  et  $10^{12}$  ions  $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ , mais sont le plus souvent de quelques  $10^{10}$  ions  $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ .

Dans le milieu interstellaire, le flux des rayons cosmiques est bas (le flux de rayons cosmiques galactiques est de l'ordre de 20 ions  $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ ). Nous avons fait attention à ne pas utiliser de trop forts flux, afin d'éviter le chauffage des échantillons. [Brunetto *et al.* 2004] ont estimé que l'élévation de température due aux irradiations par des ions de quelques centaines de keV d'échantillons de diamant avec des flux de l'ordre de  $10^{13}$  ions  $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$  (c'est-à-dire au moins un ordre de grandeur de plus que les flux de nos expériences) était seulement de 5-10 K. Par différents tests, nous avons vérifié qu'il n'existe pas d'effets dus aux flux utilisés. Nous n'avons pas observé différents régimes pour la diminution d'absorbance des bandes des C-H aliphatiques lorsque différents flux ont été successivement utilisés pour irradier un même échantillon. Deux échantillons de même type ont été irradiés avec des protons de 10 MeV, l'un avec un flux de  $10^{11}$  ions  $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ , l'autre avec un flux de  $10^{12}$  ions  $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ ; là encore, aucune différence dans la perte d'hydrogène des ces deux échantillons n'a été observée. De plus, lors de l'irradiation d'un a-C:H 1 par du carbone à 91 MeV, l'irradiation a été stoppée pendant quelques heures puis continuée, sans qu'aucune discontinuité dans l'évolution ne puisse être remarquée.

Puisque les rayons cosmiques interstellaires ont un pouvoir d'arrêt très majoritairement électronique (cf. Fig. 8.3), nous avons vérifié que les ions ne s'implanteraient pas dans le film mais dans le substrat. Il était donc requis de connaître l'épaisseur  $H$  des échantillons produits. Comme expliqué dans le chapitre 6, lorsque les franges d'interférences sont visibles dans le spectre IR, l'épaisseur est déterminée à partir de la mesure de l'interfrange  $\Delta\sigma$  grâce à la relation  $H = 1/(2 n \Delta\sigma \cos(\alpha_{IR}))$ , où  $\alpha_{IR}$  est l'angle que fait le faisceau IR avec la normale de l'échantillon ( $\alpha_{IR} = 45^\circ$ ). Lorsque les franges ne sont pas visibles, l'épaisseur est déterminée à partir de l'absorbance du continuum pour les suies, et à partir de l'absorbance de la bande à  $3.4 \mu\text{m}$  pour les a-C:H. La valeur de  $H$  résultante est donnée dans le Tableau 8.2. On peut alors vérifier que, pour la majorité des échantillons, les ions sont implantés dans le substrat, et non dans l'échantillon (la profondeur de pénétration  $R_p$  calculée par SRIM est alors largement supérieure à l'épaisseur des films). L'énergie des ions peut alors être considérée constante dans l'échantillon, c'est-à-dire que, si l'on note  $\Delta E$  la différence d'énergie de l'ion entre les deux surfaces du film, la relation  $\Delta E/E \ll 1$  est vérifiée. Par contre, dans le cas des irradiations des a-C:H avec les ions d' $\text{Ar}^{2+}$  de 400 keV et des suies avec les ions  $\text{H}^+$  à 200 keV, les ions sont implantés dans le matériau et l'interaction nucléaire devient significative au bout de la trace de



l'ion, rendant les analyses hautement non linéaires et couplant deux mécanismes d'interaction très différents. Parmi les expériences à basse énergie effectuées à Catane, seules celles avec les ions  $H^+$  de 200 keV présentent une profondeur de pénétration clairement supérieure à l'épaisseur de l'échantillon. Par précaution, nous avons choisi de n'exploiter que les résultats des expériences vérifiant  $R_p/d > 1$  (les expériences avec les ions  $He^+$  de 200 keV n'ont donc pas été retenues non plus).

Nous avons aussi vérifié que l'épaisseur des échantillons n'a pas significativement changée au cours des irradiations (l'interfrange est restée approximativement constante). On estime donc que l'érosion de la surface de l'échantillon réduit l'épaisseur que de quelques pourcents tout au plus. Cet effet n'est pas pris en compte dans la suite de ce travail.

L'apparence des échantillons irradiés est présentée sur la Fig. 8.4. La zone irradiée apparaît complètement noircie (les suies, qui sont déjà sombres avant irradiation, présentent une zone irradiée noircie lorsqu'elles sont observées par transparence en direction d'un rayonnement intense).

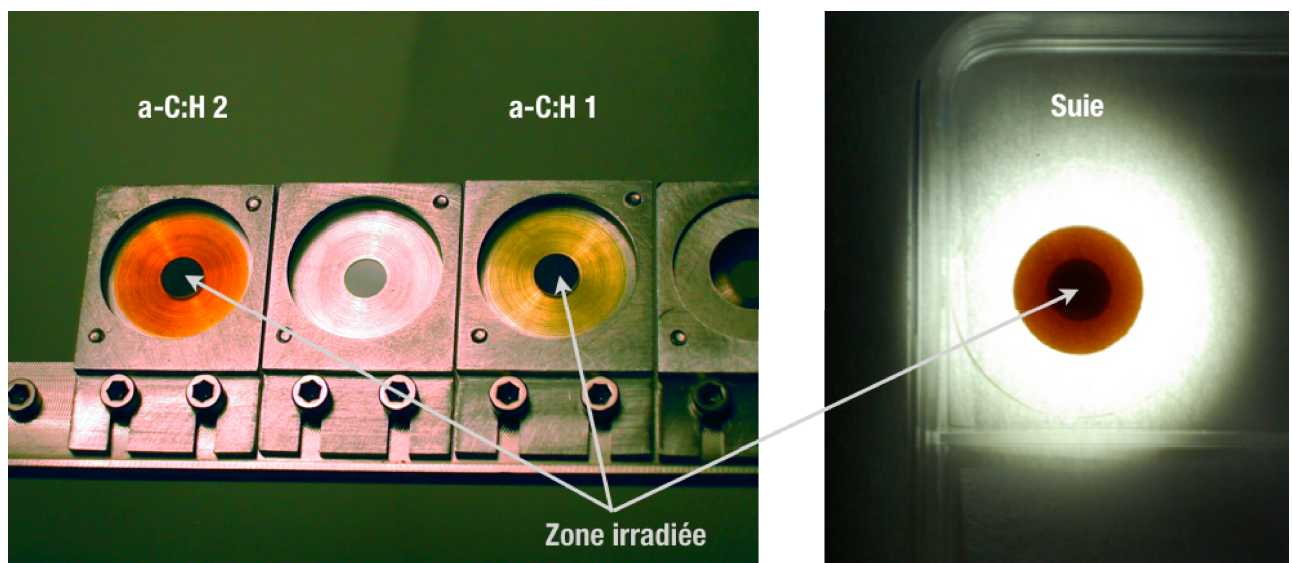


FIGURE 8.4 – **Photos d'échantillons après irradiation.** Un échantillon de chaque type est présenté. Les surfaces noires sur chaque échantillon correspondent à la zone irradiée. La photo de gauche présente les échantillons d'a-C:H dans le porte-échantillons utilisé lors des irradiations.

### 8.3 Déshydrogénation induite par l'irradiation

Toutes les irradiations de nos échantillons carbonés se sont traduites par une destruction effective<sup>1</sup> des liaisons C-H aliphatiques. La profondeur optique des bandes correspondant aux modes d'élongation (autour de  $3.4 \mu\text{m}$  ou  $2900 \text{ cm}^{-1}$ ) et de pliage (à  $6.85$  et  $7.25 \mu\text{m}$ ,  $1460$  et  $1380 \text{ cm}^{-1}$  respectivement) des groupements  $\text{sp}^3$  méthyle et méthylène décroît pendant les irradiations (Fig. 8.5). L'évolution de cette profondeur optique intégrée sur la bande des élongations des C-H aliphatiques (entre  $2760$  et  $3140 \text{ cm}^{-1}$ ) est représentée, pour les différentes expériences, sur la Fig. 8.6 en fonction de l'énergie déposée. L'évolution des a-C:H 1 (à gauche de la Fig. 8.6) et celle des a-C:H 2 (non représentée sur la figure) irradiés avec les mêmes ions sont similaires.

#### 8.3.1 Le modèle de recombinaison

La profondeur optique intégrée  $A = \int \tau \, d\sigma$  de la bande des C-H aliphatiques à  $3.4 \mu\text{m}$  (et de celles à  $6.9$  et  $7.3 \mu\text{m}$ ) diminue lorsque la fluence augmente, et donc aussi lorsque l'énergie déposée augmente (c'est ce qui est représenté sur la Fig. 8.6). Cette évolution peut être ajustée par une fonction de la forme :

$$A = \frac{1}{1/A_f + (1/A_i - 1/A_f) \exp(-\sigma_d F_I)}, \quad (8.1)$$

où  $F_I$  est la fluence d'ions (en  $\text{ion}/\text{cm}^2$ ), et  $\sigma_d$  est la section efficace de destruction effective des liaisons C-H ( $\text{cm}^2 \text{ ion}^{-1}$ ).  $A_i$  et  $A_f$  sont respectivement les valeurs initiale et asymptotique (à fluence infinie) de  $A$ , la profondeur optique intégrée. On considère que les valeurs de  $A$  sont proportionnelles à la concentration en hydrogène aliphatique  $\rho$  du matériau. L'équation 8.1 résulte donc de l'équation :

$$\rho = \frac{1}{1/\rho_f + (1/\rho_i - 1/\rho_f) \exp(-\sigma_d F_I)}, \quad (8.2)$$

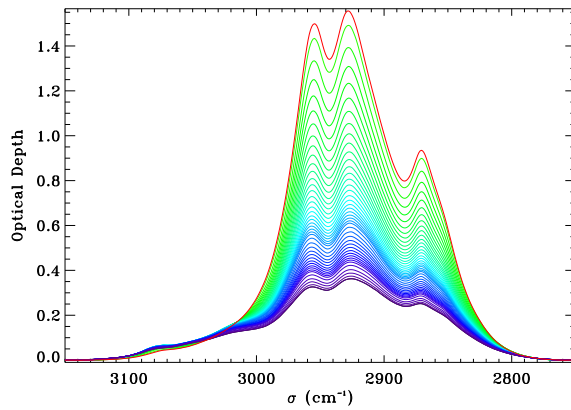
où  $\rho_i$  et  $\rho_f$  sont les concentration en hydrogène initiale et asymptotique.

Cette fonction, décrivant l'évolution du contenu en hydrogène du matériau irradié avec la fluence, résulte d'un modèle développé par [Adel *et al.* 1989] et [Marée *et al.* 1996]. Ce modèle est construit sur le fait que l'hydrogène quitte le film d'a-C:H sous forme moléculaire comme l'ont observé [Wild & Koidl 1987] et [Möller & Scherzer 1987]. Par conséquent, l'évolution de la quantité d'hydrogène est décrite par un processus du second ordre. Dans cette approche, [Adel *et al.* 1989] et [Marée *et al.* 1996] ont donc développé un modèle dans lequel la recombinaison de deux atomes d'hydrogène, libérés grâce à la rupture de liaison C-H par le dépôt

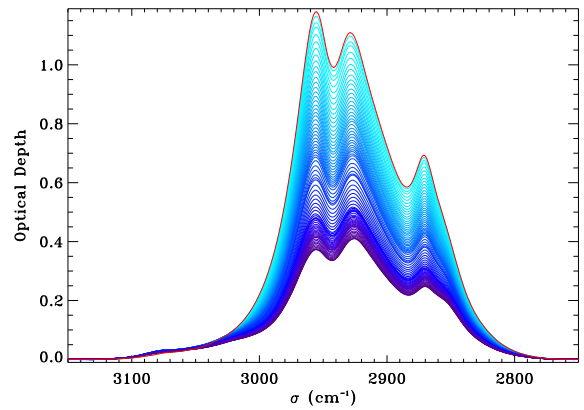
---

1. Comme cela est expliqué dans le §8.3.1, les liaisons C-H sont rompues par le passage des ions, mais une partie des atomes d'hydrogène libres vont reformer de nouvelles liaisons.

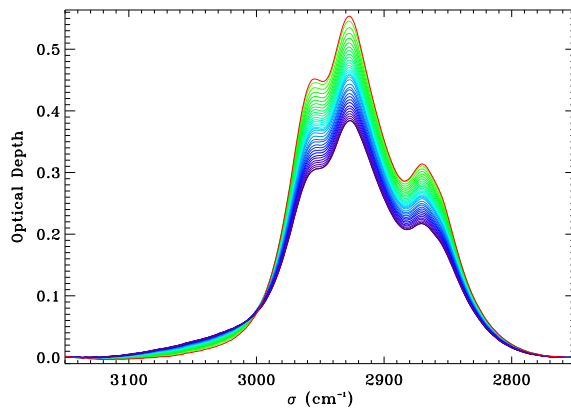




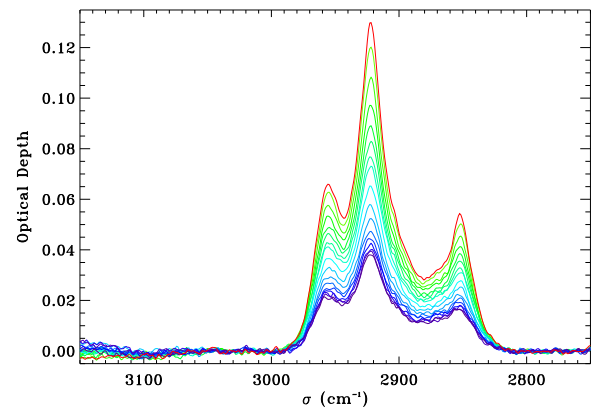
(a) Irradiation d'un a-C:H 1 avec des ions  $\text{Si}^{7+}$  de 85 MeV, entre 0 (courbe rouge) et  $1 \cdot 10^{14}$  ions  $\text{cm}^{-2}$  (courbe violette)



(b) Irradiation d'un a-C:H 1 avec des ions  $\text{I}^{12+}$  de 160 MeV, entre 0 (courbe rouge) et  $5 \cdot 10^{12}$  ions  $\text{cm}^{-2}$  (courbe violette)



(c) Irradiation d'un a-C:H 2 avec des ions  $\text{C}^{6+}$  de 91 MeV, entre 0 (courbe rouge) et  $6 \cdot 10^{14}$  ions  $\text{cm}^{-2}$  (courbe violette)



(d) Irradiation d'une suie avec des ions  $\text{Si}^{7+}$  de 85 MeV, entre 0 (courbe rouge) et  $8 \cdot 10^{13}$  ions  $\text{cm}^{-2}$  (courbe violette)

FIGURE 8.5 – Exemples de destruction par irradiation de la bande d'absorption à  $3.4 \mu\text{m}$  des liaisons C-H aliphatiques. C'est la profondeur optique qui est représentée sur ces figures, pour deux a-C:H 1 (a et b), un a-C:H 2 (c), et une suie (d). La courbe rouge correspond au spectre initial, avant irradiation. La profondeur optique décroît ensuite avec la fluence (les couleurs des courbes passent alors du vert au violet). La fluence entre deux spectres est de l'ordre de quelques  $10^{12}$  ions  $\text{cm}^{-2}$  pour les irradiations avec les ions  $\text{Si}^{7+}$  (a et d), de quelques  $10^{10}$  ions  $\text{cm}^{-2}$  pour l'irradiation avec les ions  $\text{I}^{12+}$  (b), et de quelques  $10^{13}$  ions  $\text{cm}^{-2}$  pour l'irradiation avec les ions  $\text{C}^{6+}$  (c).

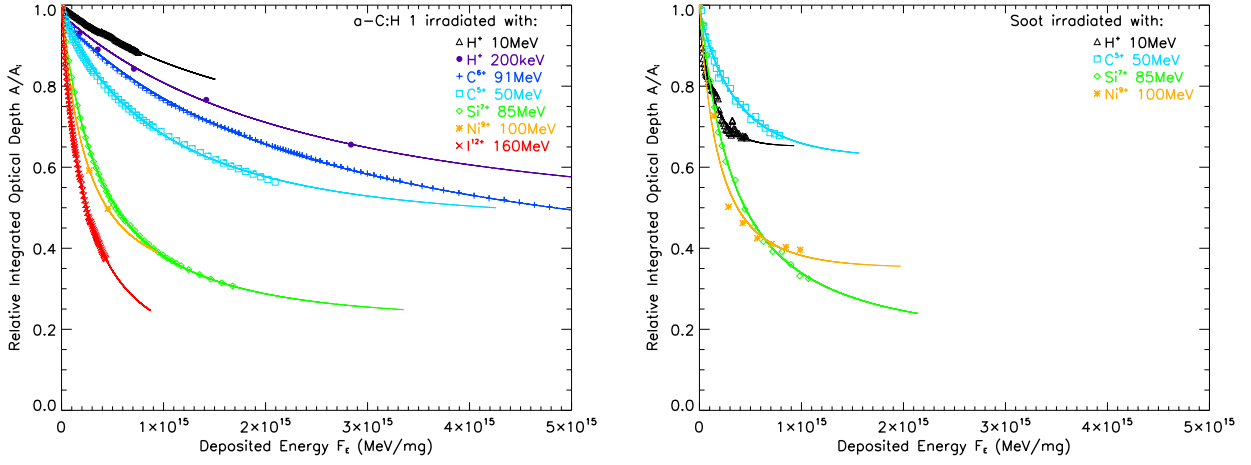


FIGURE 8.6 – **Evolution relative de la profondeur optique intégrée de la bande des élongations C-H aliphatiques.** Les valeurs de  $A/A_i$  sont tracées en fonction de l'énergie déposée par les ions  $F_E = F_I \cdot S_e$  (et non pas en fonction de la fluence, pour que les différentes expériences puissent être représentées sur le même graphique). Les ajustements correspondant au modèle de recombinaison sont aussi tracés. Les résultats correspondant aux a-C:H 1 sont représenté à gauche, et à droite ce sont les irradiations des suies.

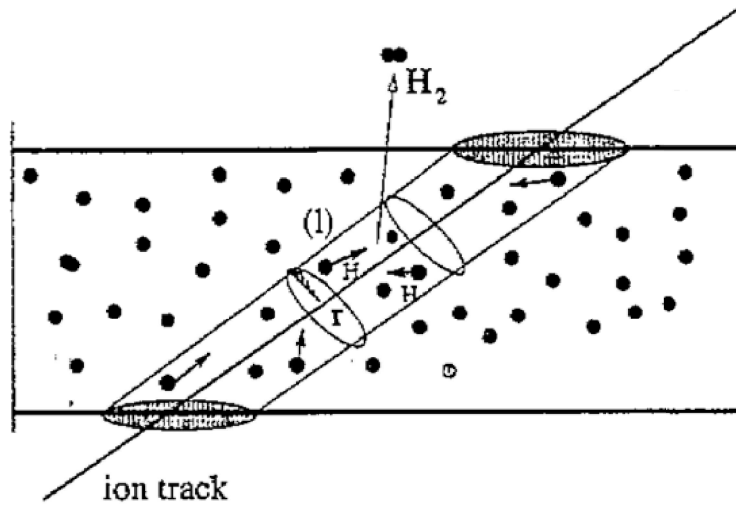


FIGURE 8.7 – **Schéma de l'interaction d'un ion énergétique avec l'hydrogène d'un film.** Des atomes d'hydrogène sont libérés le long de la trace de l'ion (de rayon  $r$ ), et peuvent recombinaison pour former une molécule de  $H_2$  qui pourra s'échapper du film. La figure est issue de [Marée *et al.* 1996].

d'énergie d'un ion incident, en hydrogène moléculaire a lieu à l'intérieur du film irradié. La molécule de  $H_2$  formée peut ensuite rapidement diffuser jusqu'à la surface sans trop d'interactions.

Lorsqu'une liaison C-H est cassée, l'atome d'hydrogène libéré diffuse sur une distance caractéristique  $l$  avant d'être éventuellement piégée par un site réactif dans le matériau irradié ou de recombiner avec un autre atome H libre. Cette distance définit un volume de recombinaison  $V$ , à l'intérieur de la trace de l'ion de rayon  $r$ , dans lequel deux atomes d'hydrogène, libérés par le passage d'un même ion, peuvent recombiner en une molécule de  $H_2$ .  $P_{break}$  définit la probabilité de rompre une liaison C-H avec un ion, et  $P_{rec}$  désigne la probabilité de recombinaison de deux atomes H diffusant dans le volume  $V$ . Le nombre de paires d'atomes d'hydrogène qui peuvent être formées par un ion incident, dans le volume  $V$  est  $\frac{1}{2} \cdot \rho V P_{break} \cdot (\rho V - 1) P_{break}$ . Le nombre d'atomes H perdus, sous forme de molécules  $H_2$ , par ion dans le volume  $V$  est donc  $\rho V (\rho V - 1) P_{break}^2 P_{rec}$ . L'équation différentielle décrivant la perte d'hydrogène dans le film en fonction de la fluence  $F_I$  est donc :

$$d\rho = -\rho(\rho V - 1) P_{break}^2 P_{rec} \cdot \pi r^2 dF_I. \quad (8.3)$$

L'équation 8.2 est la solution de cette équation différentielle avec  $\sigma_d = P_{break}^2 P_{rec} \pi r^2$  et  $\rho_f = 1/V$ . Lorsqu'il ne reste plus qu'un atome d'hydrogène dans le volume de recombinaison, on a alors  $\rho V = 1$  et la perte d'hydrogène par la recombinaison moléculaire doit alors cesser ou devenir très improbable. Ce comportement permet de relier le volume de recombinaison  $V$  avec  $\rho_f$ , la concentration finale/asymptotique en hydrogène :  $V = 1/\rho_f$ . L'équation 8.3 peut donc s'écrire :

$$\frac{d\rho}{dF_I} = -\frac{\sigma_d}{\rho_f} \rho^2 \left(1 - \frac{\rho_f}{\rho}\right). \quad (8.4)$$

L'équation 8.4 est valide pour une irradiation avec un faisceau d'ions perpendiculaire à la surface de l'échantillon. Si ce n'est pas le cas, l'angle d'incidence doit être pris en compte dans la section de la trace de l'ion. Lors des irradiations effectuées à Catane, le faisceau d'ions avait une direction faisant un angle de  $45^\circ$  par rapport à la surface de l'échantillon ; dans les équations précédentes, le paramètre  $\sigma_d$  doit alors être remplacé par  $\frac{\sigma_d}{\sin \pi/4}$ .

Ce modèle peut donc être appliqué à la perte d'hydrogène des carbones amorphes hydrogénés induite par irradiation ionique, et a été utilisé dans ce cadre par [Adel *et al.* 1989], [Marée *et al.* 1996], [Som *et al.* 1999], et [Baptista *et al.* 2004]. Ce modèle peut aussi être utilisé pour d'autres matériaux organiques (comme l'ont fait [Adel *et al.* 1989], [Marée *et al.* 1996], et [Baptista *et al.* 2004]).

Nous avons ajusté nos données (Fig.8.6) avec des fonctions correspondant à la description du modèle de recombinaison, de la forme de l'Eq. 8.2.  $\sigma_d$  et  $\rho_f$  sont alors utilisés comme des paramètres d'ajustement. Les meilleures valeurs de ces paramètres et les incertitudes associées sont déterminées par une minimisation d'un  $\chi^2$ . Les valeurs obtenues pour les sections efficaces de destruction  $\sigma_d$ , les concentrations relatives finales en hydrogène  $A_f/A_i$ , et les volumes de recombinaison  $V = 1/\rho_f$  correspondants, pour les différentes expériences, sont reportées dans le Tableau 8.3 (l'estimation des valeurs de  $V$  est expliquée dans le §8.3.3).

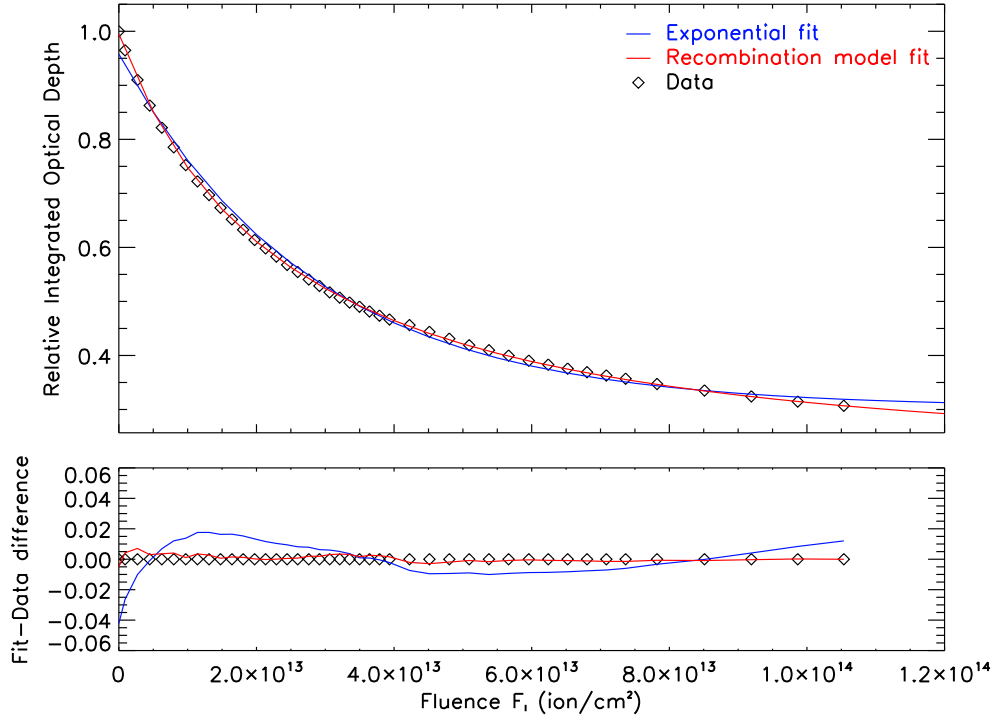


FIGURE 8.8 – Comparaison entre les meilleurs ajustements (fonction exponentielle et modèle de recombinaison) de la perte d'hydrogène induite par les irradiations. Cet exemple correspond aux irradiation d'un a-C:H 1 par des ions  $\text{Si}^{7+}$  de 85 MeV. Les données expérimentales sont représentées par les losanges noirs, le meilleur ajustement exponentiel est tracé en bleu, et le meilleur ajustement correspondant au modèle de recombinaison est en rouge. En haut, la variation relative de la profondeur optique intégrée sur la bande à  $3.4 \mu\text{m}$  est tracée en fonction de la fluence. En bas, c'est la différence entre les valeurs des ajustements et des données qui est représentée. On voit bien que l'ajustement issu du modèle de recombinaison est meilleur pour reproduire les données.

La baisse de la concentration en hydrogène peut aussi être ajustée par une fonction faisant l'hypothèse d'un processus du premier ordre. C'est ce qu'ont fait [Mennella *et al.* 2003] et [Pawlak *et al.* 1997] par exemple, en ajustant leurs données expérimentales par une fonction exponentielle à laquelle un terme constant est ajouté pour tenir compte des profondeurs optiques résiduelles des bandes aliphatiques observée à hautes fluences. Pour comparaison, nous avons analysés nos résultats systématiquement avec un ajustement correspondant au modèle de recombinaison (Eq. 8.2) et un ajustement par une fonction exponentielle du type :  $\rho = (\rho_i - \rho_f) \exp(-\sigma_d F_i) + \rho_f$ . Même si cette fonction exponentielle fournit un accord tout à fait raisonnable avec les données, l'équation 8.2 ajuste systématiquement mieux les données mesurées que la fonction exponentielle (la valeur de  $\chi^2$  est inférieure pour le modèle de recombinaison), comme le montre la Figure 8.8. Il a donc été choisi d'analyser les résultats de ces expériences avec les équations issues du modèle de recombinaison. Les résultats obtenus avec

Echantillon	Ion	$E$ (MeV)	$S_e$ (MeV/(mg/cm <sup>2</sup> ))	$\sigma_d$ (cm <sup>2</sup> )	$A_f/A_i$	$V$ (Å <sup>3</sup> )
a-C:H 1	H <sup>+</sup>	10	4.580 10 <sup>-2</sup>	< 3.5 10 <sup>-16</sup>	–	–
a-C:H 1	H <sup>+</sup>	10	4.580 10 <sup>-2</sup>	(0.3)1.9(5.6) 10 <sup>-17</sup>	(0.02)0.66(0.82)	> 22
a-C:H 1	He <sup>2+</sup>	20	3.207 10 <sup>-1</sup>	< 5.3 10 <sup>-15</sup>	–	–
a-C:H 1	H <sup>+</sup>	0.2	7.092 10 <sup>-1</sup>	(0.3)1.2(3.6) 10 <sup>-16</sup>	(0.01)0.50(0.62)	> 29
a-C:H 1	C <sup>6+</sup>	91	2.07	(0.7)3.2(7.8) 10 <sup>-16</sup>	(0.17)0.35(0.45)	(40)51(104)
a-C:H 1	C <sup>5+</sup>	50	3.274	(0.3)1.7(3.9) 10 <sup>-15</sup>	(0.23)0.47(0.55)	(32)38(78)
a-C:H 1	Si <sup>7+</sup>	85	15.91	(0.6)1.0(1.5) 10 <sup>-14</sup>	(0.21)0.23(0.25)	(73)79(83)
a-C:H 1	Ni <sup>9+</sup>	100	46.98	(1.2)6.8(15) 10 <sup>-14</sup>	< 0.37	> 49
a-C:H 1	I <sup>12+</sup>	160	89.33	(0.3)4.1(12) 10 <sup>-14</sup>	(0.01)0.10(0.18)	(98)184(1470)
a-C:H 2	He <sup>2+</sup>	20	3.207 10 <sup>-1</sup>	< 1.0 10 <sup>-17</sup>	–	–
a-C:H 2	C <sup>6+</sup>	91	2.07	(4.0)8.8(16) 10 <sup>-16</sup>	(0.46)0.55(0.61)	(29)33(38)
a-C:H 2	I <sup>12+</sup>	160	89.33	(0.02)1.8(12) 10 <sup>-13</sup>	(0.01)0.38(0.68)	(26)47(1220)
Suie	H <sup>+</sup>	10	4.109 10 <sup>-2</sup>	(0.001)2.2(6.1) 10 <sup>-16</sup>	(0.00)0.65(0.67)	> 27
Suie	C <sup>5+</sup>	50	2.864	(0.008)5.5(14) 10 <sup>-15</sup>	(0.00)0.62(0.68)	> 26
Suie	Si <sup>7+</sup>	85	13.7	(5.9)7.8(30) 10 <sup>-15</sup>	(0.00)0.18(0.32)	> 55
Suie	Ni <sup>9+</sup>	100	39.35	(0.02)8.3(23) 10 <sup>-14</sup>	(0.00)0.35(0.40)	> 45

TABLE 8.3 – Paramètres de la destruction de la bande à 3.4  $\mu\text{m}$  par les irradiations, obtenus grâce au modèle de recombinaison. Les valeurs de la section efficace de destruction des C-H aliphatiques  $\sigma_d$ , de l'asymptote de la profondeur optique intégrée relative  $A_f/A_i$ , et du volume de recombinaison  $V$  sont reportées dans ce tableau (voir le texte pour plus de détails). Les valeurs extrêmes de chacun de ces paramètres sont données entre parenthèses.

un ajustement exponentiel sont cependant présentés en annexe (Annexe C).

### 8.3.2 Sections efficaces de destruction

La Fig. 8.9 présente les valeurs de  $\sigma_d$  en fonction des pouvoirs d'arrêt électroniques  $S_e$  pour les différentes expériences d'irradiation des a-C:H et des suies. Ces valeurs sont celles déterminées à partir de la bande des élongations des liaisons C-H aliphatiques à 3.4  $\mu\text{m}$ , mais pour les a-C:H, les valeurs de  $\sigma_d$  déterminées à partir des modes de pliage à 6.9 et 7.3  $\mu\text{m}$  sont aussi tracées. Comme on aurait pu s'y attendre, les valeurs déterminées à partir de ces trois bandes IR, traçant les mêmes liaisons C-H, sont très similaires.

Les grandes barres d'erreurs illustrent le fait que les valeurs de  $\sigma_d$  déterminées avec l'équation 8.1 sont dépendantes des valeurs du paramètres  $A_f$ . Cela signifie que les incertitudes sur  $\sigma_d$  sont largement dépendantes du comportement asymptotique de la déshydrogénation à grande fluence. Pour certaines de nos expériences, les valeurs de  $A_f$  ne sont pas très contraintes. Afin de mieux contraindre les valeurs de  $A_f$ , il aurait fallu atteindre des fluences très élevées. Or, la conjonction de la durée limitée des expériences et l'obligation de ne pas utiliser des flux élevés pour ne pas chauffer les échantillons ne nous permettaient pas d'atteindre ces fluences élevées dans des temps raisonnables. La faible contrainte sur  $A_f$  apportée par nos mesures concerne

surtout les expériences avec les ions déposant peu d'énergie au matériau, c'est-à-dire celles avec les ions ayant une faible valeur de  $S_e$ . Ainsi, les irradiations avec les ions d'hélium à 20 MeV ( $S_e \approx 0.2$  MeV/(mg/cm<sup>2</sup>)) permettent seulement de déduire une limite supérieure sur les valeurs de  $A_f$  et  $\sigma_d$ .

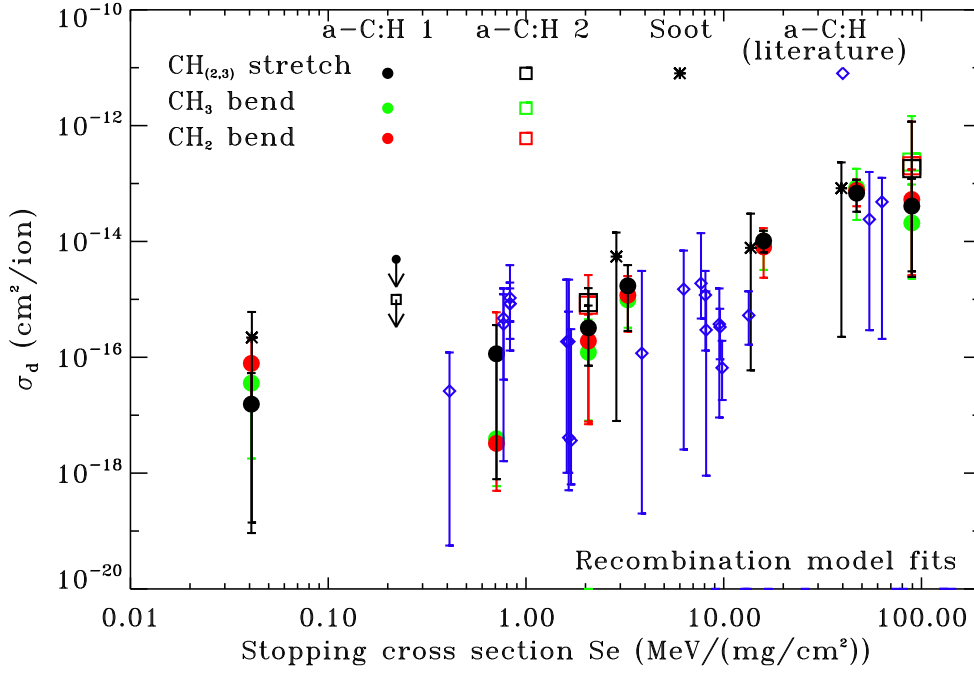


FIGURE 8.9 – Sections efficaces de destruction  $\sigma_d$  des C-H aliphatiques en fonction du pouvoir d'arrêt électronique  $S_e$ . Les valeurs de  $\sigma_d$  sont déterminées, grâce au modèle de recombinaison, pour les différentes expériences d'irradiation de nos échantillons d'a-C:H (les a-C:H 1 sont représentés par des points, les a-C:H 2 par des carrés) et de suies (croix noires). Les valeurs de  $\sigma_d$  calculées, avec les ajustements correspondants au modèle de recombinaison, à partir des données expérimentales de différentes expériences d'irradiation d'a-C:H sont représentées par les losanges bleus [Adel *et al.* 1989, Baptista *et al.* 2004, Baumann *et al.* 1987, Fujimoto *et al.* 1988, González-Hernández *et al.* 1988, Ingram & McCormick 1988, Marée *et al.* 1996, Mennella *et al.* 2003, Pawlak *et al.* 1997, Praver *et al.* 1987, Som *et al.* 2005, Som *et al.* 1999, Zou *et al.* 1988].

### 8.3.2.1 Influence du matériau irradié

Les a-C:H 1 et a-C:H 2 présentent des valeurs similaires de  $\sigma_d$ . Bien que la structure carbonée et la concentration en hydrogène soient légèrement différentes pour ces deux types de matériaux, cela ne semble pas avoir une forte influence sur les sections efficaces de destruc-

tion. Dans le cas des suies, les valeurs de  $\sigma_d$  sont aussi comparables à celles des a-C:H, aux incertitudes expérimentales<sup>2</sup> près. Cette similarité peut sembler surprenante à cause des larges différences de rapport H/C par exemple. Les suies et les a-C:H sont aussi très différents par leur squelette carboné et leur concentration en hydrogène : les suies sont principalement composées d'unités poly-aromatiques, peu organisées, et reliées les unes aux autres par des ponts aliphatiques. Cela signifie que les domaines aliphatiques des suies sont localisés aux bords des domaines aromatiques, et que la concentration des atomes d'hydrogène (reliés aux carbones aliphatiques) est loin d'être homogène dans les suies. On peut donc faire l'hypothèse que, tant que le volume de recombinaison est plus petit ou de taille comparable à la taille des domaines aliphatiques, les atomes d'hydrogène des suies subissent un environnement similaire à celui des a-C:H. Il semble donc que seulement l'environnement local des atomes d'hydrogène, représenté par le volume de recombinaison, détermine la valeur de la section efficace  $\sigma_d$ .

La Fig. 8.9 contient aussi les valeurs de  $\sigma_d$  issues de précédentes études de la déshydrogénation des a-C:H par irradiation ionique [Adel *et al.* 1989, Baptista *et al.* 2004, Baumann *et al.* 1987, Fujimoto *et al.* 1988, González-Hernández *et al.* 1988, Ingram & McCormick 1988, Marée *et al.* 1996, Mennella *et al.* 2003, Pawlak *et al.* 1997, Prawer *et al.* 1987, Som *et al.* 2005, Som *et al.* 1999, Zou *et al.* 1988]. Ces valeurs de  $\sigma_d$  et des incertitudes associées ont été déterminées à partir des données disponibles dans ces articles en utilisant la même procédure que pour les données de nos expériences (c'est-à-dire en utilisant un ajustement par l'Eq. 8.1). Seules les expériences où le pouvoir d'arrêt nucléaire n'est pas dominant ( $S_n/S_e < 0.5$ ), et où il n'y a pas d'implantation dans l'échantillon ( $H/R_p < 0.9$ ) sont représentées sur la Fig. 8.9 afin de ne pas comparer des expériences où les conditions d'irradiation sont différentes, mélangeant processus électroniques et nucléaires. Même s'il est difficile de comparer des données issues de différentes expériences, nos résultats et ceux issus de précédentes études sont pour la plupart du même ordre de grandeur, et présentent le même comportement avec  $S_e$ . Ces matériaux couvrent une large gamme de concentration en hydrogène, de quelques pourcents jusqu'à environ 50% (ces valeurs sont celles de la proportion d'atomes H/(H+C)). Par conséquent, les valeurs mesurées de sections efficaces de destruction des liaisons C-H aliphatiques semblent peu dépendantes du matériau carboné étudié et pourrait donc être une caractéristique générale.

Dans la suite de ce chapitre, seuls les résultats obtenus par nos expériences avec les a-C:H 1 et avec les ajustements correspondant au modèle de recombinaison seront utilisés, car ce sont pour ces expériences que les données sont les plus fournies, et donc que les incertitudes sont les plus basses.

### 8.3.2.2 Dépendance avec le pouvoir d'arrêt

Les sections efficaces de destruction des C-H aliphatiques semblent suivre une loi de puissance de  $S_e$ . Les résultats sont ajustés par la fonction suivante :

$$\sigma_d = K \cdot S_e^\alpha. \quad (8.5)$$

---

2. plus grandes pour les suies que pour les a-C:H



Le meilleur ajustement des valeurs de  $\sigma_d$  des a-C:H est représenté sur la Fig. 8.10 par la droite violette en trait plein. Les droites en tirets correspondent aux ajustements extrêmes. Les valeurs des paramètres de cet ajustement, pour les a-C:H et les suies, sont données dans le Tableau 8.4 (pour  $S_e$  en MeV/(mg/cm<sup>2</sup>) et  $\sigma_d$  en cm<sup>2</sup>).

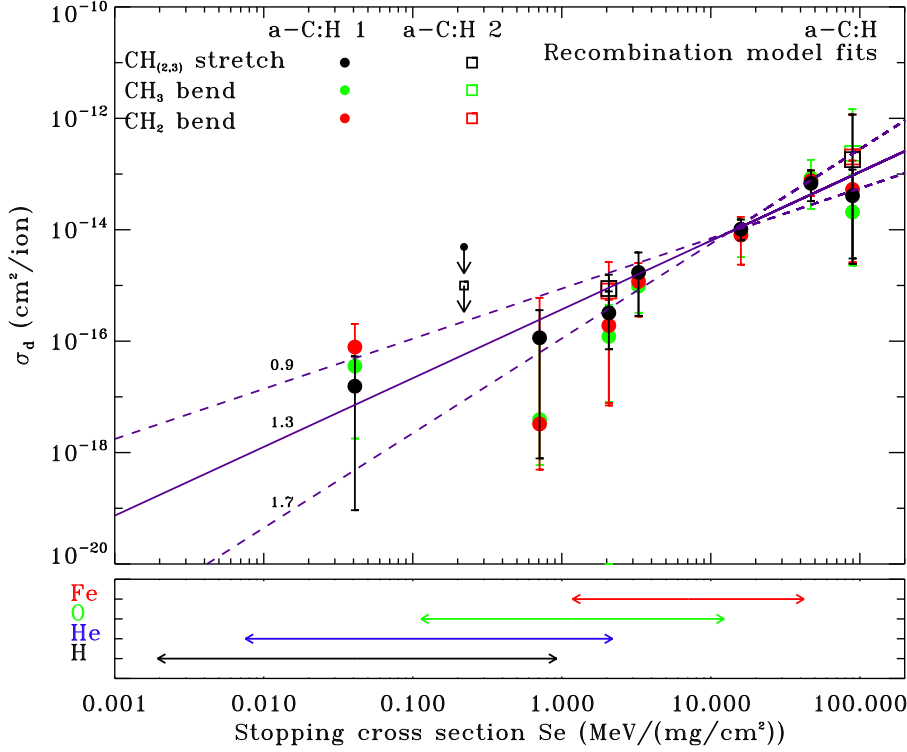


FIGURE 8.10 – Sections efficaces de destruction  $\sigma_d$  des a-C:H en fonction du pouvoir d'arrêt  $S_e$ . Les valeurs correspondantes aux modes d'élongation des liaisons C-H, à 3.4  $\mu\text{m}$ , sont représentées en noir, le mode de pliage des groupements  $\text{CH}_2$  à 6.85  $\mu\text{m}$  en rouge, et le mode de pliage des groupements  $\text{CH}_3$  à 7.25  $\mu\text{m}$  en vert, pour les a-C:H 1 (points) et a-C:H 2 (carrés). Les droites en trait plein et en tirets représentent respectivement le meilleur ajustement et les ajustements avec les valeurs extrêmes de  $\alpha$  (Les valeurs correspondantes de  $\alpha$  sont indiquées). Les flèches colorées représentent la gamme de  $S_e$  de quelques principaux éléments des rayons cosmiques.

Matériau	$\alpha$	$K$
a-C:H	$1.3(\pm 0.4)$	$5(\pm 4)10^{-16}$
Suie	$1.0(\pm 0.5)$	$2.2(\pm 1.2)10^{-15}$

TABLE 8.4 – Valeurs des paramètres d'ajustement de  $\sigma_d$  (Eq. 8.5).  $K$  est donné en  $\text{cm}^{2-2\alpha}\text{MeV}^{-\alpha}\text{mg}^\alpha$ .

Les valeurs de  $\alpha$  ne sont pas complètement contraintes et se situent entre 0.5 et 1.7, mais les valeurs satisfaisant à la fois les données concernant les a-C:H et les suies sont entre 0.9 et 1.5. Dans la suite du chapitre, les résultats seront donnés pour des valeurs de  $\alpha$  de 1.0, 1.2 et 1.4 pour montrer l'influence de différentes variations de  $\sigma_d$  avec  $S_e$ . [Mennella *et al.* 2003] ont fait l'hypothèse d'une puissance  $\alpha = 1$  (c'est-à-dire proportionnalité entre  $\sigma_d$  et  $S_e$ ), tandis que [Baptista *et al.* 2004] ont déterminé une puissance de 2 environ. Le modèle de [Marée *et al.* 1996] explique non seulement la perte d'hydrogène comme un processus cinétique de second ordre, mais explique aussi la dépendance de  $\sigma_d$  avec  $S_e$ . Comme l'expliquent les auteurs, le pouvoir d'arrêt est proportionnel à  $r^2$ . Nous avons vu que le modèle de recombinaison prédit que les valeurs de  $\sigma_d$  soient aussi proportionnelles à  $r^2$ . On pourrait donc s'attendre à ce que  $\sigma_d$  soit proportionnel à  $S_e$  (i.e.  $\alpha = 1$ ). Cela est compatible avec nos résultats expérimentaux.

Afin de comparer les pouvoirs d'arrêt  $S_e$  explorés par nos expériences avec ceux des rayons cosmiques, les gammes de  $S_e$  de plusieurs éléments principaux des rayons cosmiques (H, He, O, Fe) sont représentées sur les Figs. 8.10 et 8.11 (flèches colorées). Ces valeurs sont déterminées pour chaque élément, à partir des courbes de Bragg ( $S_e$  en fonction de l'énergie de l'ion, Fig. 8.3) et de la distribution d'énergie des rayons cosmiques (cf. §8.5.1, Fig. 8.16). La gamme d'énergie est considérée de 100 eV/nucléon jusque 10 GeV/nucléon car, en dehors, le flux de rayons cosmiques devient trop bas et/ou la destruction induite devient négligeable.

### 8.3.3 Contenu en hydrogène résiduel et volume de recombinaison

On observe que les valeurs des profondeurs optiques intégrées des bandes des C-H aliphatiques ne semblent pas tendre vers zéro à fluence infinie, et que, même à fluence très élevée, il restera probablement une fraction de l'hydrogène initial dans le matériau irradié. Cette quantité résiduelle d'hydrogène est atteinte lorsque la concentration en liaisons C-H est suffisamment faible pour que les atomes H libérés par un ion soient trop loin les uns des autres pour pouvoir recombinaison en molécules  $H_2$  (c'est-à-dire que la distance entre les atomes d'hydrogène dans le matériau est plus grande que le rayon définissant le volume de recombinaison). Les atomes H libres sont alors capturés avant de pouvoir sortir hors du matériau. Les valeurs de ce contenu résiduel en hydrogène des a-C:H, représenté par le paramètre  $A_f/A_i$  obtenu à partir de l'ajustement issu du modèle de recombinaison, sont tracées en fonction de  $S_e$  sur la Fig. 8.11. On observe que la quantité d'hydrogène finale décroît lorsque le pouvoir d'arrêt électronique augmente. Pour les expériences où les valeurs de  $S_e$  sont les plus basses (celles avec  $S_e < 1 \text{ MeV}/(\text{mg}/\text{cm}^2)$ ), les valeurs de  $A_f$  ne sont pas contraintes et des limites supérieures sont déterminées.

On peut estimer la concentration  $\rho$  d'atomes d'hydrogène dans le matériau à partir des valeurs de sa masse volumique  $\rho_M$  et du rapport H/C, données dans le §8.2.1 :

$$\rho_M = m_H \cdot \rho + m_C \cdot \rho / (H/C) \quad (8.6)$$

$$\rho = \frac{\rho_M}{m_p + 12 m_p / (H/C)} \quad (8.7)$$

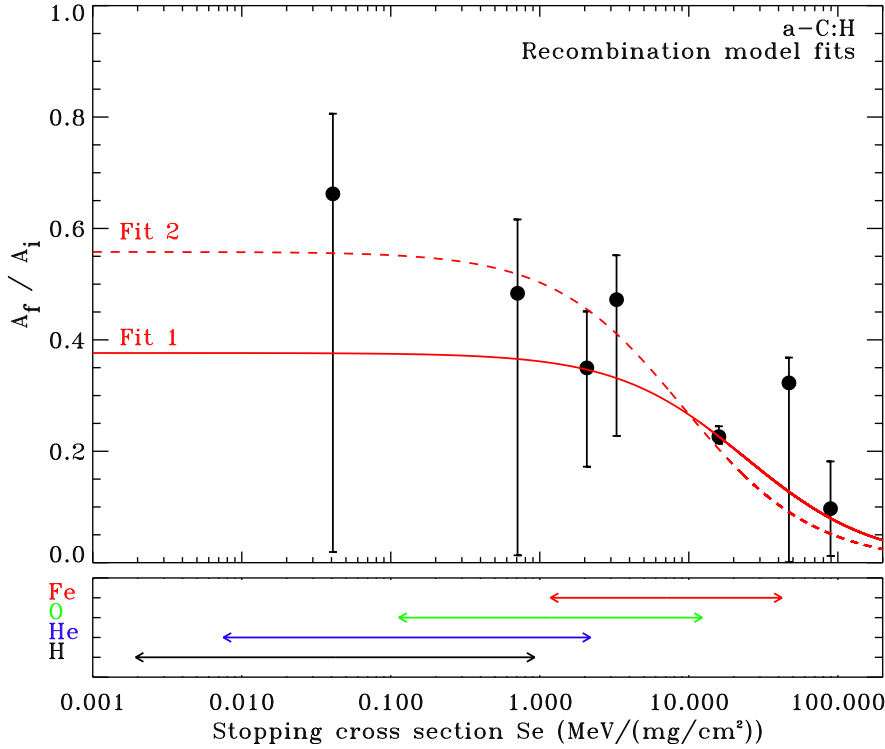


FIGURE 8.11 – Valeurs asymptotiques à fluence infinie de la profondeur optique intégrée relative  $A_f/A_i$  des a-C:H en fonction du pouvoir d'arrêt  $S_e$ . Ces valeurs sont déterminées à partir de la bande à  $3.4 \mu\text{m}$  des a-C:H 1. Deux ajustements différents, correspondant à une augmentation linéaire du volume de recombinaison  $V$  avec  $S_e$  (Eq. 8.8), sont représentés : la courbe en trait plein (fit 1) est le meilleur ajustement, et la courbe en tirets (fit 2) représente un ajustement extrême pour lequel les valeurs de  $A_f/A_i$  sont les plus fortes à bas  $S_e$ . Les flèches colorées représentent la gamme de  $S_e$  de quelques principaux éléments des rayons cosmiques.

où  $m_H$ ,  $m_C$ , et  $m_p$  désigne les masses des atomes d'hydrogène, de carbone, et la masse d'un proton. On estime ainsi une concentration initiale en hydrogène  $\rho_i$  de  $5.6 \cdot 10^{22}$  H at.  $\text{cm}^{-3}$  environ pour les a-C:H. Cela permet de calculer  $\rho_f$  à partir de  $A_f/A_i$ . Le volume de recombinaison  $V$  est défini comme l'inverse de la concentration finale en hydrogène  $\rho_f$ . Les valeurs de  $V$  ainsi estimées pour les a-C:H sont données dans le Tableau 8.3. La même méthode appliquée aux suies donne une concentration en hydrogène d'environ  $9.0 \cdot 10^{20}$  H at.  $\text{cm}^{-3}$ . Cependant, contrairement aux a-C:H, la concentration en hydrogène n'est pas homogène dans les suies, et est élevée dans les domaines aliphatiques reliant les unités aromatiques entres-elles. Les estimations de  $V$  données pour les suies dans le Tableau 8.3 sont donc calculées avec une densité locale en hydrogène égale à la valeur  $\rho_i$  des a-C:H. Les volumes obtenus sont équivalents à ceux de sphères de quelques angströms de rayon.

Les volumes de diffusion déterminés par [Marée *et al.* 1996] pour les a-C:H sont similaires

(ou légèrement supérieurs) aux nôtres pour des pouvoirs d'arrêt équivalents. Dans la littérature portant sur les irradiations ioniques des a-C:H, des quantités résiduelles d'hydrogène non nulles sont aussi observées à haute fluence et semblent compatibles avec nos résultats. Nous n'avons pas déterminé les volumes de recombinaison équivalents car la concentration en hydrogène de ces différents échantillons n'est probablement pas toujours homogène, et les valeurs de  $\rho_f$  ne peuvent alors pas être estimées correctement. Dans ces travaux, différentes observations ont été faites concernant la variation de ces contenus finaux en hydrogène avec le pouvoir d'arrêt. [Adel *et al.* 1989] ont écrit que la concentration finale en H ne dépend pas des ions utilisés, et que cette concentration résiduelle est de l'ordre de 5 % at. Ce n'est pas en accord avec l'augmentation du volume de recombinaison avec  $S_e$  que [Marée *et al.* 1996] et nous observons. [Baptista *et al.* 2004] ont trouvé une corrélation opposée, c'est-à-dire une augmentation de la quantité résiduelle d'hydrogène avec le pouvoir d'arrêt. On peut cependant remarquer que certaines des expériences de cette étude sont réalisées avec des ions dont la part d'interaction avec les noyaux, et non les électrons, du matériau cible devient importante, causant peut-être un mélange de différents mécanismes d'interaction.

### 8.3.3.1 Dépendance avec le pouvoir d'arrêt

Les volumes de recombinaison  $V$  que nous avons estimés semblent augmenter linéairement avec  $S_e$ . L'équation de l'ajustement des volumes de recombinaison des a-C:H 1 est, lorsque  $V$  est exprimé en  $\text{\AA}^3$  et  $S_e$  en  $\text{MeV}/(\text{mg}/\text{cm}^2)$  :

$$V = 2.0 \begin{pmatrix} +1.5 \\ -1.0 \end{pmatrix} S_e + 50 \begin{pmatrix} -18 \\ +20 \end{pmatrix}. \quad (8.8)$$

Le meilleur ajustement de  $A_f/A_i$  correspondant à l'Eq. 8.8, appelé dorénavant *Fit 1*, est représenté sur la Fig. 8.11 par la courbe rouge en trait plein. La courbe en tirets représente un ajustement extrême, appelé *Fit 2*, pour lequel les valeurs de  $A_f/A_i$  sont les plus fortes à bas  $S_e$  (cf. Eq. 8.8). Ces ajustements sont déterminés à partir des données expérimentales obtenues avec les a-C:H 1, mais les résultats obtenus avec les autres échantillons sont aussi compatibles avec ce comportement. De plus, les ajustements 1 et 2 sont en accord avec le modèle de recombinaison de [Marée *et al.* 1996], dans lequel les volumes de recombinaison devraient être proportionnels à  $S_e$  si le pouvoir d'arrêt est bien proportionnel à  $r^2$ .

Le minimum du volume de recombinaison  $V$ , correspondant à un maximum des valeurs de  $A_f/A_i$ , et étant associé à la constante de 50  $\text{\AA}^3$  dans l'Eq. 8.8 pour le fit 1, et 32  $\text{\AA}^3$  pour le fit 2, est aussi cohérent avec le modèle de recombinaison. En effet, ces volumes minimum sont équivalents aux volumes de sphères de 2-3  $\text{\AA}$  de rayon, c'est-à-dire la distance approximative  $a$  entre deux atomes d'hydrogène adjacents<sup>3</sup>. Le rayon du volume de diffusion ne pouvant pas être plus petit que  $a$ , cela explique la présence d'un maximum pour les valeurs de  $A_f/A_i$  à bas  $S_e$ . On peut aussi remarquer que, si l'on fait l'hypothèse que l'on peut estimer le rayon de la trace de l'ion  $r$  à partir de la section efficace de destruction  $\sigma_d$  avec l'approximation  $\pi r^2 \sim \sigma_d$ , alors

---

3.  $a = \rho_i^{-1/3} = 2.6 \text{ \AA}$  avec notre estimation de  $\rho_i = 5.610^{22} \text{ at. cm}^{-3}$  pour les a-C:H.

la transition à  $S_e \sim 1 \text{ MeV}/(\text{mg}/\text{cm}^2)$ , en dessous de laquelle  $A_f/A_i$  est approximativement constant, correspond environ au pouvoir d'arrêt pour lequel le volume de diffusion est équivalent à un sphère de rayon  $r$ .

## 8.4 Autres modifications observées des a-C:H irradiés

Dans ce chapitre, nous analysons la déshydrogénation des matériaux irradiés, observée au travers de la diminution de la profondeur optique des bandes de vibration des liaisons C-H aliphatiques. Cette modification est la plus flagrante pour les matériaux irradiés, et les bandes d'absorption IR qui disparaissent peu à peu au cours de l'irradiation sont les signatures spectrales observées dans le milieu interstellaire diffus. Cependant, la mesure de la transmission de nos échantillons dans l'IR proche et moyen nous permet de constater d'autres modifications de structure induites par les irradiations qui seront seulement abordées dans cette section. La Figure 8.12 présente la variation du spectre IR d'un échantillon d'a-C:H 1 durant son irradiation par des ions  $\text{Si}^{7+}$  de 85 MeV.

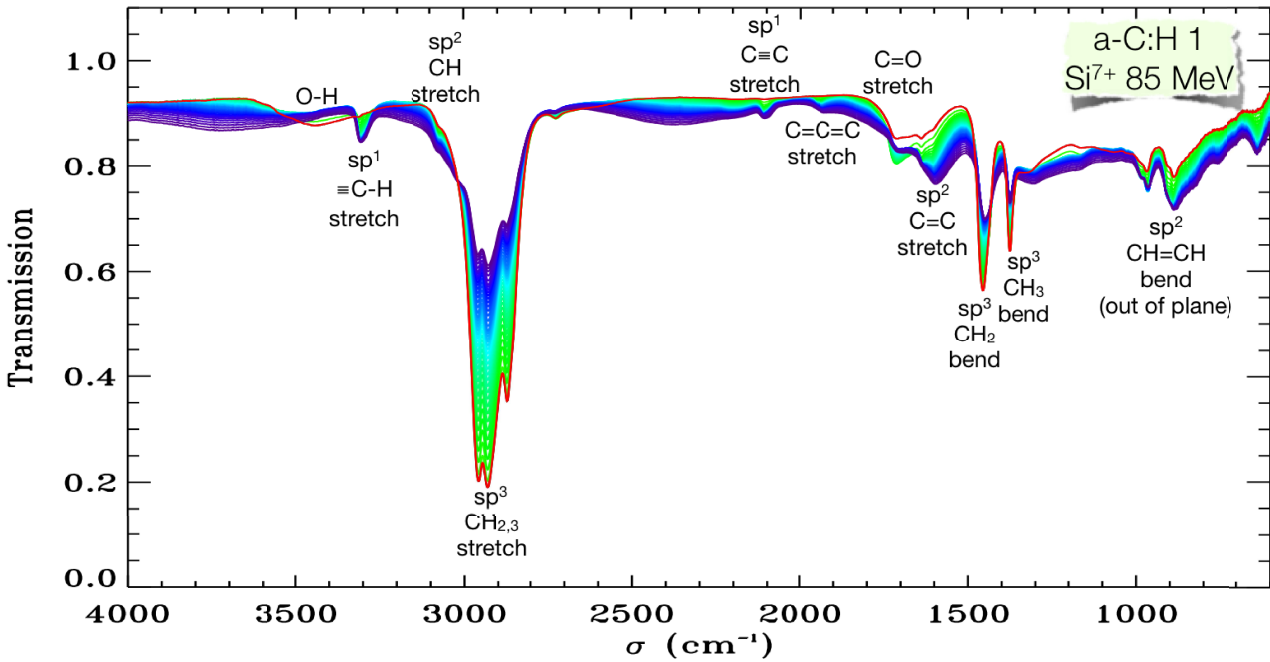


FIGURE 8.12 – Modification du spectre IR d'un a-C:H 1 durant son irradiation par des ions  $\text{Si}^{7+}$  de 85 MeV. La courbe rouge correspond au spectre initial, avant irradiation. Les spectres passent ensuite du vert au violet lorsque la fluence augmente. La fluence entre deux spectres est de l'ordre de quelques  $10^{12} \text{ ions cm}^{-2}$ .

Ce spectre montre la variation de nombreuses bandes d'absorption IR. On observe bien la décroissance des bandes de vibrations des liaisons C-H aliphatiques à  $3.4 \mu\text{m}$  ( $\sim 2950 \text{ cm}^{-1}$ ),

6.85  $\mu\text{m}$  ( $\sim 1450\text{ cm}^{-1}$ ) et 7.25  $\mu\text{m}$  ( $\sim 1375\text{ cm}^{-1}$ ), mais la profondeur optique d'autres bandes d'absorption augmente avec la fluence.

**Formation de liaisons triples (carbones  $\text{sp}^1$ ) :** On observe que des carbones hybridés  $\text{sp}^1$  (carbones formant des liaisons triples visibles au travers des vibrations des liaisons C-H à  $3300\text{ cm}^{-1}$  et des liaisons  $\text{C}\equiv\text{C}$  à  $2100\text{ cm}^{-1}$ ) apparaissent dans le matériau irradié. On peut caractériser cette formation en définissant une section efficace de formation  $\sigma_f$  comme la pente à l'origine de l'évolution de la profondeur optique intégrée sur la bande en fonction de la fluence. Les valeurs de  $\sigma_f$  déterminées pour les liaisons  $\text{C}\equiv\text{C}$  acétyléniques (c'est-à-dire reliées par une liaison triple) semblent augmenter environ linéairement avec le pouvoir d'arrêt  $S_e$  comme le montre la Fig. 8.13 (la courbe rouge est une droite d'équation  $\sigma_f = 1.8 \cdot 10^{-17} \cdot S_e^{1.1}$ ).

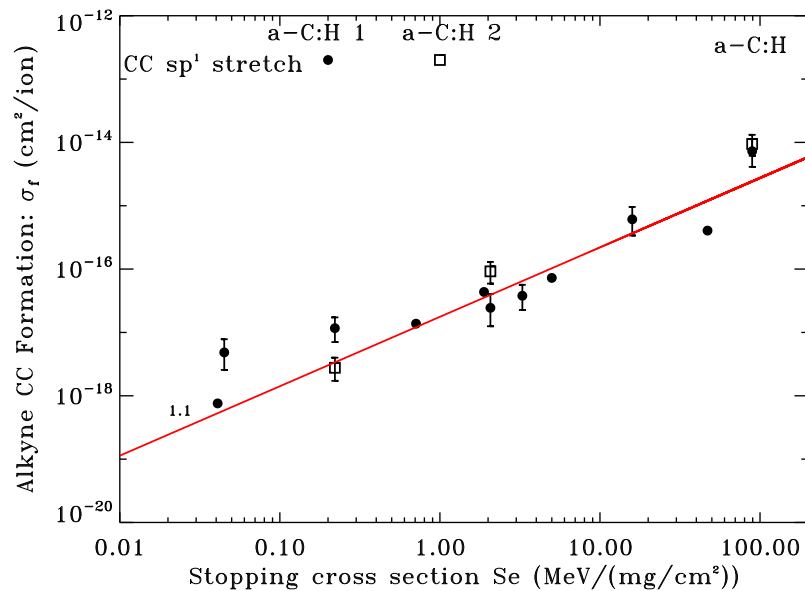


FIGURE 8.13 – Section efficace de formation  $\sigma_f$  des liaisons CC acétyléniques ( $\text{sp}^1$ ) des a-C:H en fonction du pouvoir d'arrêt électronique  $S_e$ . La courbe rouge est une droite d'équation  $\sigma_f = 1.8 \cdot 10^{-17} \cdot S_e^{1.1}$ .

**Formation de liaisons doubles (carbones  $\text{sp}^2$ ) :** Le spectre de la Fig. 8.12 montre aussi l'augmentation du nombre de carbone  $\text{sp}^2$  dans les a-C:H irradiés. En effet, les modes d'élongation des liaisons C-H oléfiniques (à  $3080$  et  $3010\text{ cm}^{-1}$ ) et les modes de pliage associés (entre  $800$  et  $1000\text{ cm}^{-1}$ ) présentent des profondeurs optiques qui augmentent avec la fluence. La croissance des bandes autour de  $1600\text{ cm}^{-1}$  et  $1930\text{ cm}^{-1}$  montre que des liaisons  $\text{C}=\text{C}$  apparaissent. Les élongations de ces liaisons doubles entre deux atomes de carbone se situent autour de  $1640\text{ cm}^{-1}$  lorsqu'elles sont dans des chaînes oléfiniques et autour de  $1600\text{ cm}^{-1}$  lorsqu'elles sont intégrées dans un cycle aromatique. L'évolution de la sous-structure autour

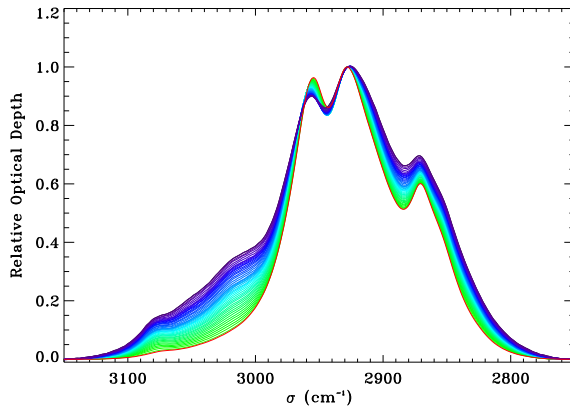
de 1600-1650  $\text{cm}^{-1}$  semble montrer que le rapport  $\text{C}=\text{C}_{\text{aromatique}}/\text{C}=\text{C}_{\text{oléfinique}}$  augmente avec la fluence.

**Evolution des groupements oxygénés :** Les quelques atomes d'oxygène présents dans nos a-C:H sont visibles au travers des élongations des liaisons O-H vers 3400-3500  $\text{cm}^{-1}$  et des liaisons C=O autour de 1710  $\text{cm}^{-1}$ . L'irradiation des échantillons d'a-C:H provoque aussi l'évolution de ces bandes d'absorption : on observe presque systématiquement une rapide diminution de la bande des OH au début de l'irradiation. Parallèlement, la bande des liaisons C=O augmente aussi assez rapidement avant de décroître plus lentement. Cela suggère que l'oxygène des groupements hydroxyles se réorganise pour former des groupements carbonyle, et que l'oxygène est ensuite évacué petit à petit.

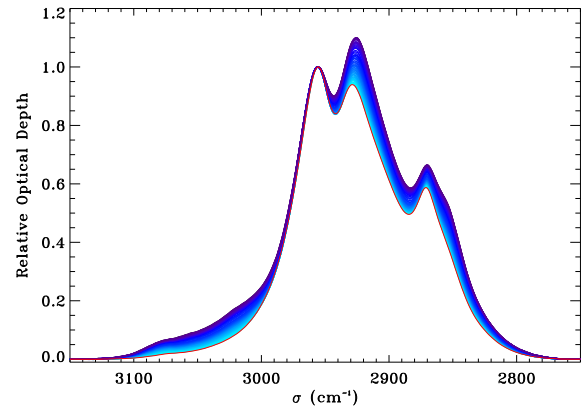
**Modification de la structure de la bande à 3.4  $\mu\text{m}$**  Nous avons vu que la profondeur optique de la bande à 3.4  $\mu\text{m}$  diminue avec la fluence, traduisant la destruction des liaisons C-H aliphatiques. En normalisant la profondeur optique de cette bande pour les différents spectres acquis au cours des irradiations, on se rend compte que la sous-structure de la bande change aussi. La Figure 8.14 montre ce changement en reprenant les spectres affichés sur la Fig. 8.5, mais en représentant leur profondeur optique normalisée. Les spectres des a-C:H (a, b, et c) confirment l'augmentation du nombre de carbone  $\text{sp}^2$  (relativement par rapport aux carbones  $\text{sp}^3$  sur cette figure). En effet, les sous-structures entre 3000 et 3100  $\text{cm}^{-1}$  sont due aux modes d'élongation des liaisons C-H dont le carbone est hybridé  $\text{sp}^2$ . En particulier, les bandes que l'on distingue vers 3010 et 3080  $\text{cm}^{-1}$  sont celles des CH oléfiniques, et il existe entre les deux une bande des CH aromatiques. Par ailleurs, pour les a-C:H 1, on remarque une variation relative des modes d'élongation des groupements méthyles par rapport aux groupements méthylènes. Le rapport  $\text{CH}_2/\text{CH}_3$  déterminé à partir des modes d'élongation asymétriques (à 2955 et 2925  $\text{cm}^{-1}$ ) augmente avec la fluence. De même, les modes symétriques (à 2870 et 2855  $\text{cm}^{-1}$ ) montrent aussi cette augmentation de  $\text{CH}_2/\text{CH}_3$  au travers de l'apparition de l'épaule à 2855  $\text{cm}^{-1}$ , dû aux groupements  $\text{CH}_2$ , de plus en plus visible lorsque la fluence augmente (la Fig. 8.14 b est celle qui permet le mieux de voir ce changement de structure). Par contre, les a-C:H 2 et les suies ne montrent pas de changement significatif de la structure de la bande à 3.4  $\mu\text{m}$  (sauf l'augmentation des modes d'élongation des liaisons C-H  $\text{sp}^2$  pour l'a-C:H 2).

Ainsi, l'hydrogène atomique libéré par la rupture des liaisons C-H aliphatiques lors du passage des ions énergétiques pourra s'échapper hors du matériaux (sous forme de  $\text{H}_2$ ) ou bien sera capturé et formera à nouveau une liaison dans le matériau. Cette nouvelle liaison avec un atome d'hydrogène pourra éventuellement être une liaison C-H aliphatique, mais la Fig. 8.12 nous montre qu'un certain nombre de ces atomes d'hydrogène formera des liaisons C-H dont le carbone est hybridé  $\text{sp}^2$  ou  $\text{sp}^1$ . Il serait intéressant d'évaluer les rapports entre les différentes liaisons C-H formées et le nombre de liaisons C-H aliphatiques détruites. Les spectres présentés sur la Fig. 8.12 semblent montrer que l'irradiation des a-C:H fait évoluer la structure du matériau en diminuant sa concentration en hydrogène aliphatique et en augmentant les

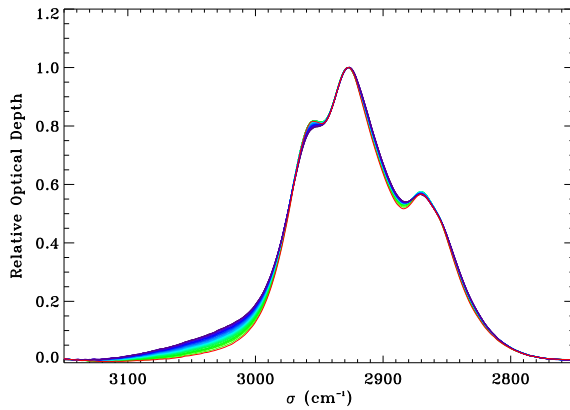




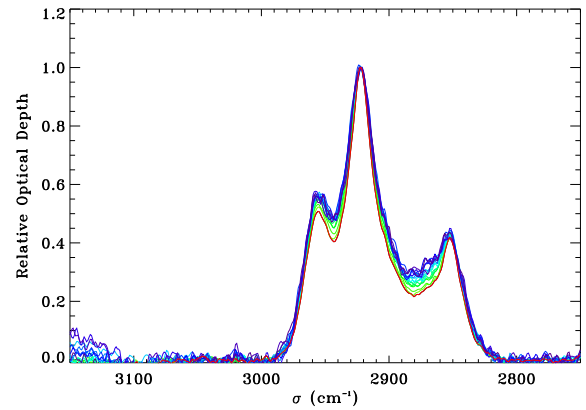
(a) Irradiation d'un a-C:H 1 avec des ions  $\text{Si}^{7+}$  de 85 MeV, entre 0 (courbe rouge) et  $1 \cdot 10^{14}$  ions  $\text{cm}^{-2}$  (courbe violette)



(b) Irradiation d'un a-C:H 1 avec des ions  $\text{I}^{12+}$  de 160 MeV, entre 0 (courbe rouge) et  $5 \cdot 10^{12}$  ions  $\text{cm}^{-2}$  (courbe violette)



(c) Irradiation d'un a-C:H 2 avec des ions  $\text{C}^{6+}$  de 91 MeV, entre 0 (courbe rouge) et  $6 \cdot 10^{14}$  ions  $\text{cm}^{-2}$  (courbe violette)



(d) Irradiation d'une suie avec des ions  $\text{Si}^{7+}$  de 85 MeV, entre 0 (courbe rouge) et  $8 \cdot 10^{13}$  ions  $\text{cm}^{-2}$  (courbe violette)

**FIGURE 8.14 – Modification de la structure de la bande à  $3.4 \mu\text{m}$  des a-C:H durant l'irradiation.** Les différents spectres sont normalisés par leur profondeur optique maximum. La profondeur optique normalisée est représentée sur ces figures, pour deux a-C:H 1 (a et b), un a-C:H 2 (c), et une suie (d). La courbe rouge correspond au spectre initial, avant irradiation. Les spectres passent ensuite du vert au violet lorsque la fluence augmente. La fluence entre deux spectres est de l'ordre de quelques  $10^{12}$  ions  $\text{cm}^{-2}$  pour les irradiations avec les ions  $\text{Si}^{7+}$  (a et d), de quelques  $10^{10}$  ions  $\text{cm}^{-2}$  pour l'irradiation avec les ions  $\text{I}^{12+}$  (b), et de quelques  $10^{13}$  ions  $\text{cm}^{-2}$  pour l'irradiation avec les ions  $\text{C}^{6+}$  (c). Les spectres correspondants non normalisés sont représentés sur la Fig. 8.5.

rapports  $\text{sp}^2/\text{sp}^3$  et  $\text{CH}_2/\text{CH}_3$ . L'analyse de ces transformations est en cours, mais permettra de mieux comprendre les mécanismes de restructuration du matériau lors de son irradiation.

## 8.5 Implications astrophysiques concernant la déshydrogénation

En utilisant les résultats de ces expériences d'irradiation ionique, il est possible d'estimer la section efficace de destruction effective des liaisons C-H aliphatiques  $\sigma_d(Z, E_A)$  et la concentration asymptotique d'hydrogène à haute fluence  $\rho_f(Z, E_A)$  pour chaque ion de numéro atomique  $Z$  et d'énergie par nucléon  $E_A$ . Dans cette section, ces résultats seront utilisés pour déduire l'évolution des a-C:H interstellaires, et des signatures spectrales associées, lorsqu'ils sont exposés aux rayons cosmiques. Pour estimer la contribution globale de ce rayonnement énergétique, nous allons sommer les effets de chaque élément et chaque énergie des différents rayons cosmiques.

### 8.5.1 Flux interstellaire des rayons cosmiques

Nous avons besoin de connaître le flux de rayons cosmiques irradiant les poussières interstellaires, en fonction de leur énergie et pour les différents éléments. On désigne par  $\frac{dN}{dE_A}(Z, E_A)$  le flux différentiel de rayons cosmiques (particules  $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1} \text{sr}^{-1} (\text{MeV}/\text{nucleon})^{-1}$ ) de numéro atomique  $Z$  et d'énergie par nucléon  $E_A$ .

La dépendance en  $Z$  de ce flux est donnée par  $A_{/H}(Z)$ , l'abondance relative de chaque élément (normalisé à l'hydrogène). Différentes distributions  $A_{/H}(Z)$  trouvées dans la littérature sont représentées sur la Fig. 8.15 (<http://galprop.stanford.edu/>, [Simpson 1983], [Meyer *et al.* 1998b], Fig. 3 of [Hörandel 2008] et les références citées). Des différences existent entre ces distributions et les effets de ces différences sur l'ionisation du gaz interstellaire et la destruction de la composante aliphatique par les rayons cosmiques sont reportés dans le Tableau 8.5. Nous avons comparé les résultats concernant le taux d'ionisation par les rayons cosmiques (cf. §8.5.2) et choisi d'utiliser la distribution élémentaire de rayons cosmiques à 100 MeV/nucléon donnée par le code GALPROP dont les résultats sont disponibles en ligne (modèle de réaccélération, <http://galprop.stanford.edu/>, [Vladimirov *et al.* 2011]). Tous les éléments plus légers que le cuivre sont considérés ( $Z \leq 29$ ).

Dans la suite, nous utiliserons la distribution d'énergie des rayons cosmiques donnée par [Webber & Yushak 1983]. Dans cet article, le flux différentiel des protons  $\frac{dN_H}{dE_A}(E_A)$  (en particules  $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1} \text{sr}^{-1} (\text{MeV}/\text{nucl})^{-1}$ ) est exprimé par :

$$\frac{dN_H}{dE_A}(E_A) = \frac{C E_A^{0.3}}{(E_A + E_0)^3}, \quad (8.9)$$

où  $E_A$  est l'énergie par nucléon des rayons cosmiques (en MeV/nucléon),  $C = 9.42 \cdot 10^4$  est une constante de normalisation, et  $E_0 = 400 \text{ MeV}/\text{nucléon}$  est un paramètre modifiant la partie

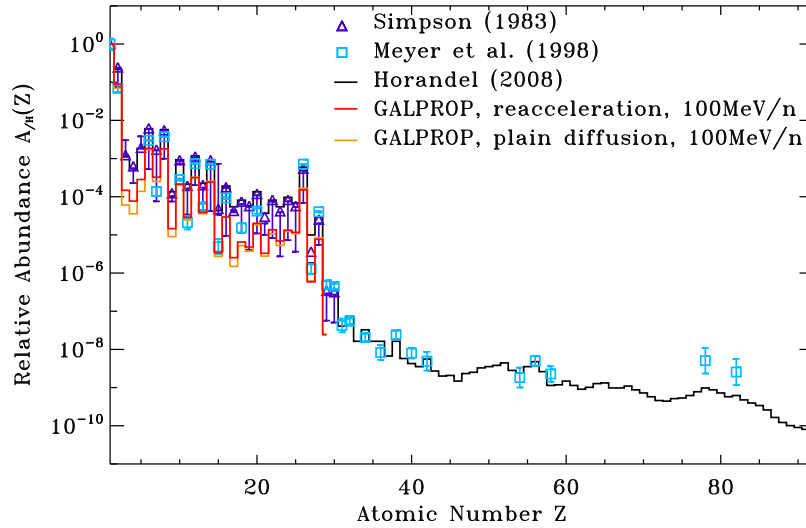


FIGURE 8.15 – **Distributions d'abondance des rayons cosmiques en fonction du numéro atomique  $Z$ .** Ces abondances, normalisées à l'hydrogène, correspondent à des énergies de l'ordre de 0.1-1 GeV/nucléon. Elles sont issues du modèle GALPROP (<http://galprop.stanford.edu/>), de [Simpson 1983], de [Meyer *et al.* 1998b], de la Fig. 3 de [Hörandel 2008] et des références citées.

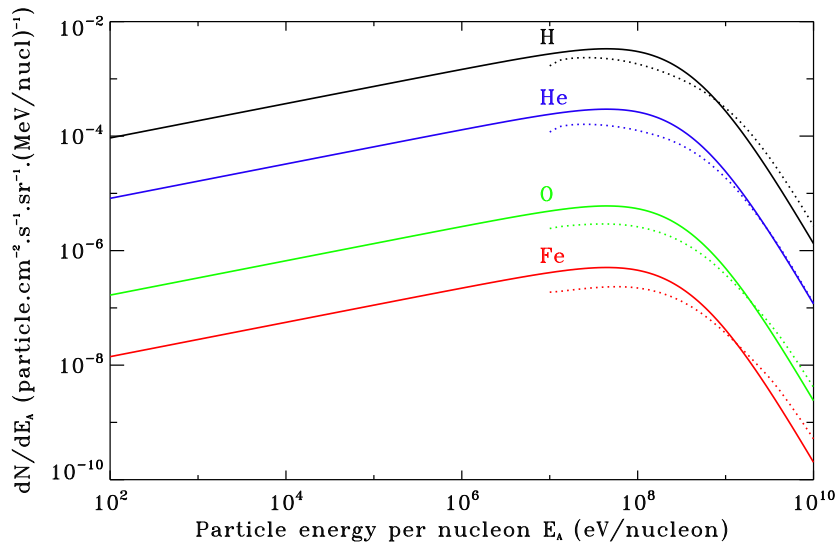


FIGURE 8.16 – **Flux différentiel  $dN/dE_A$  des principaux CR en fonction de leur énergie par nucléon  $E_A$ .** Les distributions en trait plein sont données par [Webber & Yushak 1983, Shen *et al.* 2004] (voir le texte pour plus de détails) et sont celles adoptées. Les courbes en pointillés sont les distributions données par GALPROP (<http://galprop.stanford.edu/webrun/>, [Vladimirov *et al.* 2011]), tracées pour comparaison.

à basse énergie du spectre des rayons cosmiques. A cause de la modulation solaire (effet du champ magnétique et du vent solaire sur les rayons cosmiques galactiques, cf. §1.3.2), la distribution des rayons cosmiques à basse énergie n'est pas directement mesurable depuis la Terre, et n'est pas complètement contrainte en dessous de 10–100 MeV/nucléon. [Padovani *et al.* 2009] ont comparé deux distributions extrêmes du spectre des CR à basse énergie : ces deux distributions, minimale et maximale, présentent des flux respectivement fortement décroissant et fortement croissant en dessous de 10 MeV. Elles sont issues de [Webber 1998] (minimum) et [Moskalenko *et al.* 2002] (maximum), et sont extrapolées par une loi de puissance aux énergies inférieures à 10 MeV. La distribution maximale apparaît comme une limite supérieure forte. La distribution adoptée ici est entre ces deux extrêmes. De plus, [Padovani *et al.* 2009] ont calculé que ces deux distributions d'énergie initiale (c'est-à-dire à la source) sont modifiées lorsque les rayons cosmiques se propagent et interagissent avec le milieu interstellaire. Elles tendent alors toutes les deux vers une distribution où le flux des CR à basse énergie est à peu près constant, semblable à la distribution que nous avons adoptée.

Les distributions de vitesse des CR sont assez similaires pour les différents éléments. Par conséquent, comme l'ont fait [Shen *et al.* 2004], nous adoptons une même distribution d'énergie normalisée pour chaque élément des CR (lorsque représentée en énergie par nucléon). Les distributions d'énergie obtenues avec le code GALPROP (courbes en pointillés sur la Fig. 8.16) confirment que ce choix est raisonnable. Le flux différentiel de chaque élément est donc obtenu en combinant la distribution d'énergie donnée par l'Eq. 8.9, valable pour les protons, avec les abondances relatives de chaque élément par rapport aux protons  $\frac{dN}{dE_A}(Z, E_A) = A_H(Z) \cdot \frac{dN_H}{dE_A}(E_A)$ . On considère les énergies par nucléon  $E_A$  entre 100 eV et 10 GeV ; le flux de rayons cosmiques en dehors de cette gamme est bas et induit une moindre destruction (car les valeurs du pouvoir d'arrêt électronique sont basses en dehors de cette gamme, comme le montrent les courbes de Bragg (Fig. 8.3), et celles des sections efficaces de destruction sont donc faibles aussi).

### 8.5.2 Taux d'ionisation

Afin de vérifier que la distribution de rayons cosmiques choisie est cohérente, on cherche à relier le flux de CR adopté à une observable astrophysique. Cette observable est le taux d'ionisation interstellaire par les rayons cosmiques  $R_{i,CR}$  (en  $s^{-1}$ ), et peut être calculée grâce à l'équation suivante :

$$R_{i,CR} = (1 + k_{2nd} e^-) 4\pi \sum_Z \int \sigma_i(Z, E_A) \frac{dN}{dE_A}(Z, E_A) dE_A, \quad (8.10)$$

où le spectre des rayons cosmiques  $\frac{dN}{dE_A}(Z, E_A)$  est déterminé comme expliqué dans la section précédente. Les sections efficaces  $\sigma_i(Z, E_A)$  ( $cm^2/ion$ ) d'ionisation par les ions énergétiques sont estimées à partir de l'équation de Bethe donnée par [Spitzer & Tomasko 1968] :

$$\sigma_i(Z, E_A) = \frac{1.23 \cdot 10^{-20} Z^2}{\beta^2} (6.20 + \log_{10} \frac{\beta^2}{1 - \beta^2} - 0.43 \beta^2) \quad (8.11)$$

Distribution $A_{/H}(Z)$	$\eta$	Taux d'ionisation ( $\text{s}^{-1}$ )	Taux de destruction ( $\text{s}^{-1}$ )		
			$\alpha = 1.0$	$\alpha = 1.2$	$\alpha = 1.4$
GALPROP (reacceleration model <sup>a</sup> )	1.84	$2.3 \cdot 10^{-17}$	$1.6 \cdot 10^{-16}$	$6.1 \cdot 10^{-17}$	$3.1 \cdot 10^{-17}$
GALPROP (plain diffusion model <sup>a</sup> )	1.76	$2.2 \cdot 10^{-17}$	$1.5 \cdot 10^{-16}$	$5.9 \cdot 10^{-17}$	$3.0 \cdot 10^{-17}$
[Meyer <i>et al.</i> 1998b]	2.47	$3.1 \cdot 10^{-17}$	$2.1 \cdot 10^{-16}$	$1.0 \cdot 10^{-16}$	$6.5 \cdot 10^{-17}$
[Simpson 1983]	3.93	$4.9 \cdot 10^{-17}$	$3.3 \cdot 10^{-16}$	$1.6 \cdot 10^{-16}$	$9.9 \cdot 10^{-17}$
[Hörandel 2008]	3.88	$4.9 \cdot 10^{-17}$	$3.2 \cdot 10^{-16}$	$1.6 \cdot 10^{-16}$	$1.0 \cdot 10^{-16}$

<sup>a</sup> Ces deux modèles diffèrent par les valeurs des paramètres décrivant la propagation des rayons cosmiques [Moskalenko *et al.* 2002].

TABLE 8.5 – **Comparaison des différentes distributions d'abondance  $A_{/H}(Z)$  des rayons cosmiques.** Les conséquences de ces différentes distributions sur les valeurs de  $\eta$ , des taux d'ionisation et de destruction sont indiquées (voir le texte pour plus de détails).

où  $\beta \cdot c$  est la vitesse des ions énergétiques.  $k_{2nd\ e-}$  est la fraction du taux d'ionisation due aux électrons secondaires, c'est-à-dire les électrons produits par le processus d'ionisation et qui contribuent ensuite à ioniser d'autres atomes lorsque leur énergie est assez élevée. Ce facteur a une valeur autour de  $k_{2nd\ e-} = 0.7$  [Cravens & Dalgarno 1978]. Avec la distribution de rayons cosmiques adoptée, un taux d'ionisation  $R_{i,CR} = 2 \cdot 10^{-17} \text{s}^{-1}$  est obtenu.

La plupart des observations du  $\text{H}_3^+$  dans le milieu interstellaire diffus fournissent des valeurs du taux d'ionisation par les rayons cosmiques entre  $2 \cdot 10^{-17} \text{s}^{-1}$  et  $4 \cdot 10^{-16} \text{s}^{-1}$  [Webber 1998, Dalgarno 2006, Indriolo *et al.* 2007, Indriolo *et al.* 2009]. Néanmoins, une valeur de  $1.2 \cdot 10^{-15} \text{s}^{-1}$  a été déterminée par [McCall *et al.* 2003]. Les taux d'ionisation calculés à partir des différentes distributions de CR de la Fig. 8.15 sont tous de quelques  $10^{-17} \text{s}^{-1}$  (nous reviendrons sur les implications d'un plus fort taux d'ionisation dans le §8.5.6). Par ailleurs, les ions lourds, autres que l'hydrogène, sont souvent considérés contribuer au taux d'ionisation environ 1.8 fois plus que les atomes d'hydrogène [Spitzer & Tomasko 1968, Shen *et al.* 2004]. Ce facteur peut être calculé par la somme  $\eta = \sum A_{/H}(Z) Z^2$  (cf. équations 8.10 et 8.11). Avec la distribution de GALPROP adoptée, on trouve  $\eta = 1.8$ . Le Tableau 8.5 montre une comparaison de  $\eta$  et  $R_{i,CR}$  estimés à partir des différentes distributions  $A_{/H}(Z)$ .

### 8.5.3 Taux de destruction

Le taux de destruction  $R_{d,CR}$  (en  $\text{s}^{-1}$ ) de la composante interstellaire des C-H aliphatiques par les rayons cosmiques peut être calculé par la méthode utilisée par [Mennella *et al.* 2003] :

$$R_{d,CR} = 4\pi \sum_Z \int \sigma_d(Z, E_A) \frac{dN}{dE_A}(Z, E_A) dE_A. \quad (8.12)$$

Le code SRIM permet de calculer les pouvoirs d'arrêt électroniques  $S_e$  pour chaque élément de numéro atomique  $Z$  et chaque énergie par nucléon  $E_A$ . Les valeurs correspondantes de  $\sigma_d(Z, E_A)$  peuvent alors être déterminées par la relation établie grâce à nos expériences (Fig.

8.10). On peut ainsi estimer les sections efficaces de destruction pour tous les rayons cosmiques. En appliquant l'Eq. 8.12, on trouve un taux de destruction interstellaire des C-H aliphatiques par les rayons cosmiques  $R_{d,CR} = 3.1 \cdot 10^{-17} \text{s}^{-1}$  (pour  $\alpha = 1.4$ ),  $R_{d,CR} = 6.1 \cdot 10^{-17} \text{s}^{-1}$  (pour  $\alpha = 1.2$ ) et  $R_{d,CR} = 1.6 \cdot 10^{-16} \text{s}^{-1}$  (pour  $\alpha = 1.0$ ). Ces valeurs sont un ordre de grandeur plus faible que celle déterminée par [Mennella *et al.* 2003]. Les valeurs de  $R_{d,CR}$  déterminées avec les différentes distributions  $A_H(Z)$  sont aussi comparées dans le Tableau 8.5. Cependant, ce taux de destruction, calculé comme l'ont fait [Mennella *et al.* 2003], ne prend pas en compte la quantité résiduelle de liaisons C-H aliphatiques observée à hautes fluences.

#### 8.5.4 Evolution des C-H aliphatiques interstellaires due aux rayons cosmiques

Nous cherchons maintenant à décrire plus en détail l'évolution des a-C:H interstellaires et de leurs signatures spectrales sous l'effet des rayons cosmiques. La variable  $\rho(t)$  représente la quantité de C-H aliphatiques interstellaires.

$$\begin{aligned} \rho(t + dt) &= \rho(t) + d\rho(t) \\ &= \rho(t) + \sum_Z \int d\rho_{Z,E_A}(t) \\ &= \rho(t) + \sum_Z \int \frac{d\rho_{Z,E_A}}{dF_I}(t) \frac{dF_I}{dE_A} dE_A \end{aligned}$$

$\frac{dF_I}{dE_A}$  s'exprime en ions  $\text{cm}^{-2} (\text{MeV}/\text{nucl})^{-1}$  et cette variable est reliée au flux différentiel des rayons cosmiques par :

$$\frac{dF_I}{dE_A} = \frac{dN}{dE_A} \cdot dt \cdot 4\pi.$$

L'équation décrivant l'évolution de la concentration des C-H aliphatiques des poussières interstellaires devient :

$$\rho(t + dt) = \rho(t) + dt \frac{d\rho}{dt}(t) \quad (8.13)$$

$$\text{avec : } \frac{d\rho}{dt}(t) = 4\pi \sum_Z \int \frac{d\rho_{Z,E_A}}{dF_I}(t) \frac{dN}{dE_A}(Z, E_A) dE_A \quad (8.14)$$

La valeur  $\frac{d\rho}{dt}(t)$  représente la destruction de la composante aliphatique hydrogénée à l'instant  $t$  par l'ensemble des rayons cosmiques. Les équations du modèle de recombinaison nous permettent de déduire :

$$\frac{d\rho_{Z,E_A}}{dF_I}(t) = \begin{cases} 0 & \text{si } \rho(t) \leq \rho_f(Z, E_A) \\ -\sigma_d(Z, E_A) \cdot \rho(t) \cdot \left( \frac{\rho(t)}{\rho_f(Z, E_A)} - 1 \right) & \text{si } \rho(t) > \rho_f(Z, E_A) \end{cases}$$

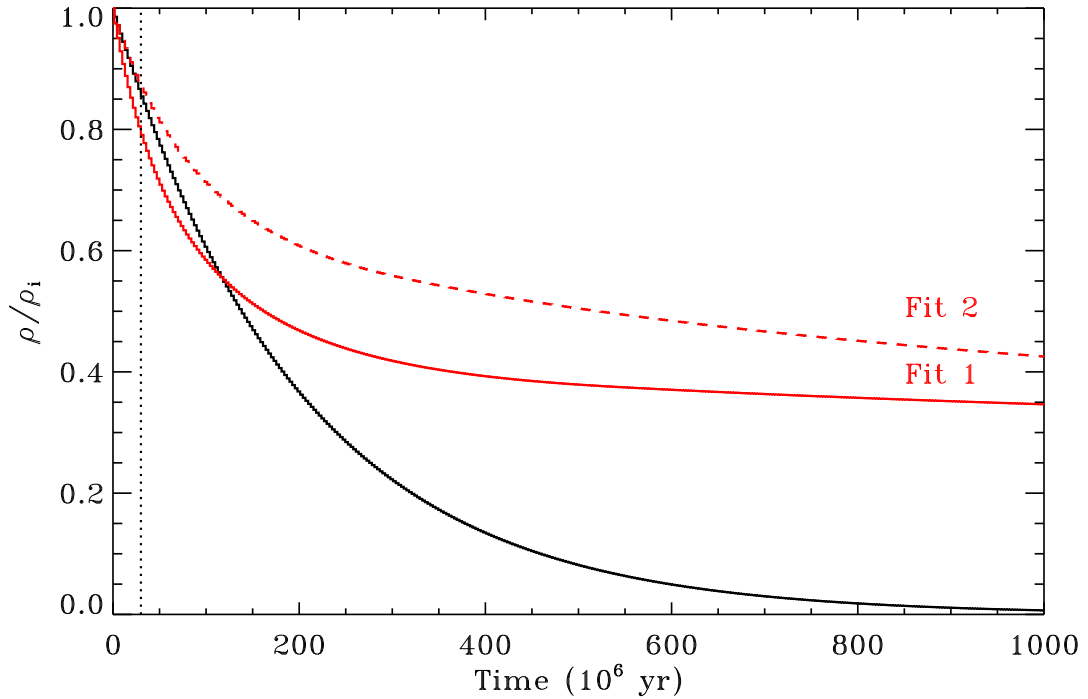


FIGURE 8.17 – **Evolution des C-H aliphatiques interstellaires (et des signatures IR associées) sous l'effet des rayons cosmiques.** Les valeurs de  $\sigma_d$  sont déterminées à partir des données des a-C:H 1 avec  $\alpha = 1.0$  (Fig. 8.10). La courbe noire correspond à une décroissance exponentielle sans prise en compte des quantités résiduelles d'hydrogène ( $\rho/\rho_i = \exp(-R_{d,CR} \cdot t)$ ). Les courbes rouges en trait plein (fit 1) et en tirets (fit 2) sont obtenues lorsque les valeurs asymptotiques  $\rho_f/\rho_i \neq 0$  sont considérées. Les valeurs de  $\rho_f/\rho_i$  sont déterminées à partir des données des a-C:H 1 avec deux ajustements différents (voir les fits 1 et 2 sur la Fig. 8.11). La droite verticale en pointillés correspond au temps de vie caractéristique d'un nuage interstellaire  $t = 3 \cdot 10^7$  ans [McKee 1989, Draine 1990, Jones *et al.* 1994].

Ajustements adoptés	$A_f/A_i = 0$	$A_f/A_i$ : Fit 1	$A_f/A_i$ : Fit 2
$\sigma_d : \alpha = 1.0$	14%	21%	13%
$\sigma_d : \alpha = 1.2$	6%	10%	7%
$\sigma_d : \alpha = 1.4$	3%	6%	5%

TABLE 8.6 – **Pourcentage de destruction  $\%_d$  après  $t = 3 \cdot 10^7$  ans (temps de vie moyen d'un nuage interstellaire) d'exposition aux rayons cosmiques.** Les différentes valeurs correspondent aux différents ajustements adoptés concernant les valeurs de  $\sigma_d$  et  $A_f/A_i$ .

On considère donc que, lorsque  $\rho(t)$  a dépassé la valeur asymptotique  $\rho_f(Z, E_A)$ , le rayon cosmique de numéro atomique  $Z$  et d'énergie par nucléon  $E_A$  ne participe plus à la destruction,



et  $\frac{d\rho_{Z,E_A}}{dF_I}(t) = 0$  pour  $\rho(t) \leq \rho_f(Z, E_A)$ . Les valeurs de  $\sigma_d(Z, E_A)$  et  $\rho_f(Z, E_A)$  sont calculées pour chaque ion et énergie à partir du comportement des échantillons d'a-C:H irradiés avec le pouvoir d'arrêt  $S_e$  (Figs. 8.10 et 8.11). L'évolution temporelle des C-H aliphatiques interstellaires sous l'effet des rayons cosmiques est représentée sur la Fig. 8.17. On peut remarquer que le taux de destruction  $R_{d,CR}$ , défini dans la section précédente, correspond à la valeur de  $-\frac{1}{\rho} \frac{d\rho}{dt}$  lorsque  $\rho$  suit une décroissance exponentielle avec  $\rho_f = 0$ . Cette décroissance exponentielle  $\rho/\rho_i = \exp(-R_{d,CR} \cdot t)$  (où seulement les valeurs de  $\sigma_d(Z, E_A)$  sont considérées, pas les valeurs de  $\rho_f(Z, E_A)$ ) est aussi représentée sur la Fig. 8.17 (courbe noire) pour comparaison. Le temps caractéristique de destruction est de l'ordre de quelques  $10^8$  ans. Les fractions des C-H aliphatiques détruites  $\%_d$  correspondant au temps de vie caractéristique d'un nuage interstellaire  $t = 3 \cdot 10^7$  ans [McKee 1989, Draine 1990, Jones *et al.* 1994] sont données dans le Tableau 8.6 pour les différents ajustements adoptés.

### 8.5.5 Contribution des ions lourds

Dans le calcul du taux de destruction décrit dans le §8.5.3 (c'est-à-dire lorsque la destruction est décrite par une décroissance exponentielle ne prenant pas en compte le contenu résiduel en hydrogène), les contributions des ions lourds à l'ionisation et la destruction sont constantes dans le temps et sont indiquées dans le Tableau 8.7.

Element	Abundance (%)	Ionization (%)	Destruction, for $A_f/A_i = 0$ (%)		
			$\alpha = 1.0$	$\alpha = 1.2$	$\alpha = 1.4$
H	91.4	54.3	55.7	38.7	22.7
He	8.1	19.1	19.5	17.8	13.6
O	0.2	6.3	6.1	9.3	11.4
Fe	0.01	5.6	4.8	10.8	19.3

TABLE 8.7 – **Contributions des éléments majeurs des CR à l'ionisation et la destruction lorsque l'on considère  $A_f/A_i = 0$ .** L'abondance des rayons cosmiques indiquée est celle donnée par GALPROP, à 100 MeV par nucléon (reacceleration model). La contribution de ces différents éléments à la destruction lorsque l'on prend en compte les valeurs de  $A_f/A_i \neq 0$  est représentée sur la Fig. 8.18.

En prenant en compte la quantité résiduelle de liaisons C-H après de longues irradiations, la contribution des rayons cosmiques plus lourds que l'hydrogène et l'hélium pour la destruction augmente avec le temps (cf. Fig. 8.18). La contribution des éléments légers devient négligeable lorsque la valeur de  $A_f/A_i$  correspondant à ces éléments est dépassée, et alors, seuls les éléments plus lourds poursuivent la destruction. Sur la Fig. 8.18, on peut voir que, pour  $\alpha = 1.0$ , la transition où les ions lourds commencent à dominer la destruction a lieu après quelques centaines de millions d'années d'irradiation. Cela correspond à un temps un peu plus long que le temps de vie caractéristique d'un nuage interstellaire. Si  $\alpha = 1.4$ , les éléments lourds ont

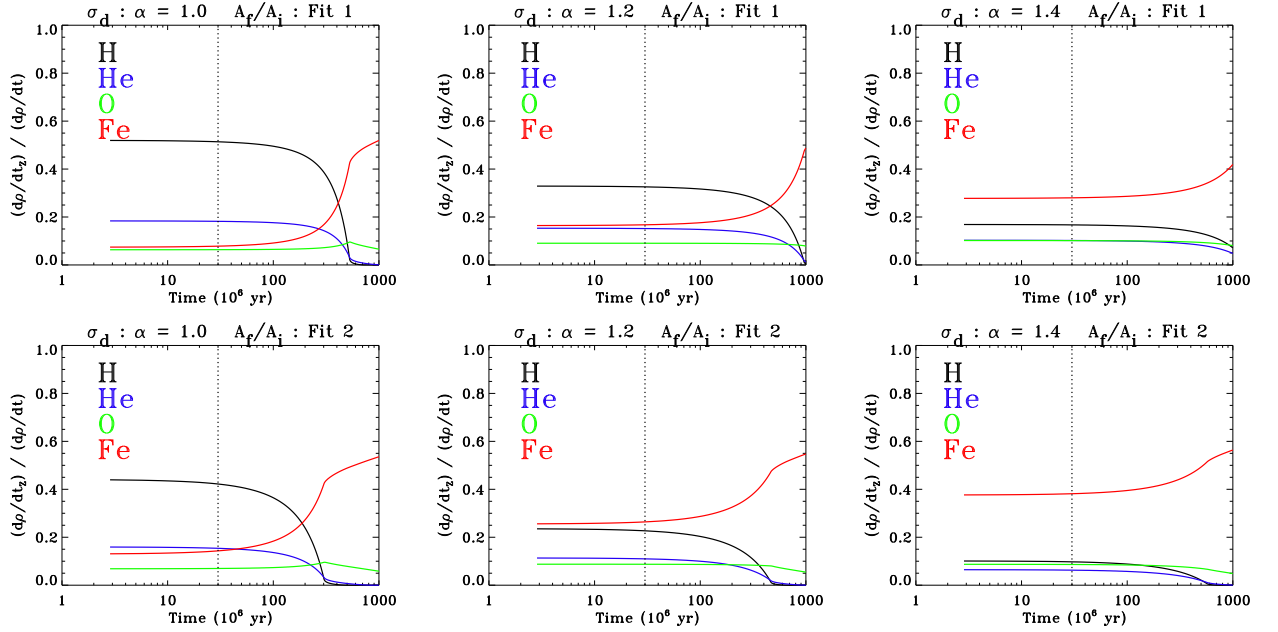


FIGURE 8.18 – Contributions de quelques CR à la destruction pour  $A_f/A_i \neq 0$  en fonction du temps d’irradiation. La contribution de chaque élément de numéro atomique  $Z$  à l’instant  $t$  est représentée par  $\frac{d\rho}{dt}(Z)/\frac{d\rho}{dt}$ , où  $\frac{d\rho}{dt}$  est la destruction en considérant tous les rayons cosmiques et  $\frac{d\rho}{dt}(Z)$  est la destruction en ne considérant que les rayons cosmiques de numéro atomique  $Z$ . La droite verticale en pointillés correspond au temps de vie caractéristique d’un nuage interstellaire  $t = 3 \cdot 10^7$  ans [McKee 1989, Draine 1990, Jones *et al.* 1994].

une contribution dominante dès le début de l’exposition aux rayons cosmiques. C’est aussi le cas lorsque  $\alpha \geq 1.3$  pour le fit 1, et lorsque  $\alpha \geq 1.2$  pour le fit 2.

Dans tous les cas, la contribution à la destruction des éléments lourds, et en particulier des ions fer, est importante. Bien que, parmi les rayons cosmiques, les ions Fe ont une abondance plus faible de quatre ordres de grandeur par rapport aux protons, ils contribuent à eux seuls entre 5% et 40% (pour  $t \leq 10^8$  ans) de la destruction des C-H aliphatiques par les rayons cosmiques.

### 8.5.6 Implications d’un fort taux d’ionisation

Nous avons vu que les spectres de rayons cosmiques interstellaires standards, discutés dans la section 8.5.1 et utilisés comme distributions de CR pour ce travail, permettent de prédire des taux d’ionisation de quelques  $10^{-17} \text{ s}^{-1}$  (e.g [Webber 1998] et tableau 8.5). Jusqu’il y a quelques années, les taux d’ionisation déterminés à partir d’observations (utilisant les traceurs moléculaire comme HD ou OH) étaient de cet ordre de grandeur. Mais, plus récemment, plusieurs mesures de l’abondance de  $\text{H}_3^+$  indiquent des valeurs plutôt de quelques  $10^{-16} \text{ s}^{-1}$  [McCall *et al.* 2003, Indriolo *et al.* 2007]. Les implications d’un tel taux d’ionisation sont dis-

cutées par [Indriolo *et al.* 2009]. Etant donné que ce sont les rayons cosmiques de basse énergie ( $\sim 10$  MeV) qui sont les plus efficaces pour ioniser l'hydrogène, et que le spectre des CR n'est réellement connu que pour les énergies supérieures à quelques centaines de MeV par nucléon à cause de la modulation solaire, les récentes valeurs du taux d'ionisation indiquent que le flux des CR de basse énergie couramment utilisés jusqu'à présent sont probablement sous-estimés.

Les implications d'un flux plus important de rayons cosmiques de basse énergie par rapport à celui adopté dans ce chapitre d'après [Webber & Yushak 1983] (cf. Fig. 8.16 et Eq. 8.9) sont estimées en adoptant une distribution d'énergie donnée aussi par l'équation 8.9 mais avec  $E_0 = 200$  MeV/nucléon (au lieu de 400 MeV/nucléon). Cela implique une augmentation d'un ordre de grandeur du flux de CR ayant des énergies inférieures à 100 MeV/nucléon, et le flux de CR d'énergie supérieure à 1 GeV/nucléon n'est pas modifié. Le taux d'ionisation correspondant vaut  $1.3 \cdot 10^{-16} \text{ s}^{-1}$ . Le taux de destruction  $R_{d,CR}$  devient  $8.3 \cdot 10^{-16} \text{ s}^{-1}$  pour  $\alpha = 1.0$ ,  $3.5 \cdot 10^{-16} \text{ s}^{-1}$  pour  $\alpha = 1.2$ , et  $1.9 \cdot 10^{-16} \text{ s}^{-1}$  pour  $\alpha = 1.4$ . Les pourcentages de destruction après  $t = 3 \cdot 10^7$  ans d'exposition aux CR sont donnés dans le Tableau 8.8. Le temps caractéristique de destruction est plus court que pour la distribution donnant un taux d'ionisation de quelques  $10^{-17} \text{ s}^{-1}$ , mais est toujours de l'ordre de  $10^8$  ans.

Ajustements adoptés	$A_f/A_i = 0$	$A_f/A_i$ : Fit 1	$A_f/A_i$ : Fit 2
$\sigma_d : \alpha = 1.0$	57%	52%	39%
$\sigma_d : \alpha = 1.2$	30%	38%	31%
$\sigma_d : \alpha = 1.4$	17%	30%	26%

TABLE 8.8 – **Pourcentage de destruction  $\%_d$  après  $t = 3 \cdot 10^7$  ans (temps de vie moyen d'un nuage interstellaire) d'exposition aux rayons cosmiques pour  $E_0 = 200$  MeV/nucl.** Les différentes valeurs correspondent aux différents ajustements adoptés concernant les valeurs de  $\sigma_d$  et  $A_f/A_i$ . Ce tableau est similaire au tableau 8.6, mais correspond à un flux plus important de rayons cosmiques de basse énergie ( $E_0 = 200$  au lieu de 400 MeV/nucl dans l'équation 8.9).

Les conclusions obtenues avec un flux plus faible de CR de basse énergie restent donc inchangées, à savoir que le temps de destruction est de l'ordre de  $10^8$  ans, et que la destruction n'est pas complète même pour des temps d'exposition aux rayons cosmiques plus long.

### 8.5.7 Evolution entre les phases diffuses et denses du milieu interstellaire

Nous allons maintenant discuter, à partir des résultats obtenus dans les sections précédentes, la contribution des rayons cosmiques pour la destruction des a-C:H interstellaires et le rôle qu'ils jouent dans la disparition de la bande à  $3.4 \mu\text{m}$  dans les nuages interstellaires denses. Les effets des rayons cosmiques seront comparés à la destruction induite par les photons UV, et la formation ayant lieu lorsque les poussières sont exposées à un flux d'atomes d'hydrogène.

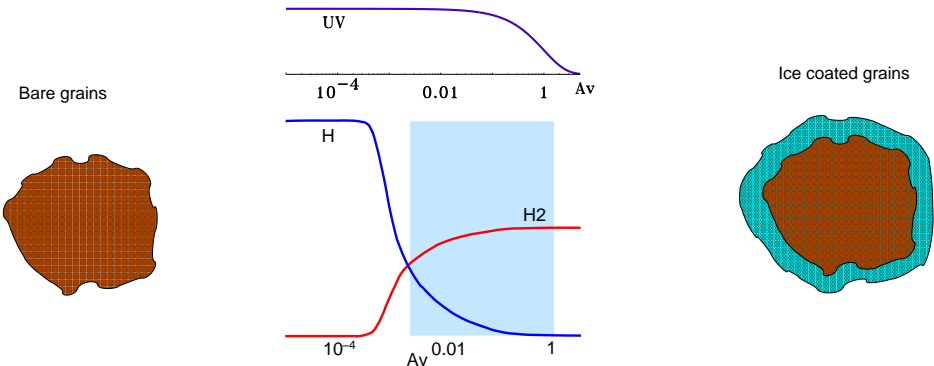
Les effets de chacun de ces processus seront confrontés dans les différents environnements interstellaires. La discussion de l'altération des poussières aliphatiques dans les régions diffuses et denses du MIS montrera l'importance de considérer aussi les régions intermédiaires. Cette discussion est résumée dans le Tableau 8.9.

Comme le montre la Fig. 8.17, le temps caractéristique de destruction  $t_{d,CR}$  de la signature spectrale à  $3.4 \mu\text{m}$  par les rayons cosmiques est de quelques  $10^8$  ans, un temps supérieur à la durée de vie typique d'un nuage interstellaire  $t_{cloud} = 3 \cdot 10^7$  ans. De plus, en considérant les valeurs asymptotiques  $A_f$  non nulles à fluence élevée dans le modèle astrophysique décrit au §8.5.4, on trouve que, même pour des temps d'irradiation plus longs, la destruction par les rayons cosmiques n'est pas totale (après  $1 \cdot 10^9$  ans, la destruction par les CR ne dépasse pas 65%). Ces résultats sont valides à la fois pour les phases interstellaires diffuses et denses puisque le flux de rayons cosmiques est approximativement le même pour ces deux types de régions (ou légèrement inférieur dans les régions les plus denses). Cela confirme que l'irradiation par les rayons cosmiques ne peut pas être le seul processus responsable de la disparition de la bande d'absorption à  $3.4 \mu\text{m}$  dans le MIS dense.

En fait, lorsqu'ils sont présents les photons UV dominant le plus souvent la destruction de la composante aliphatique hydrogénée. La déshydrogénation par irradiation UV a été étudiée par [Muñoz Caro *et al.* 2001] dans le cas de molécules hydrocarbures, et par [Mennella *et al.* 2001] pour des grains hydrocarbonés. Ces auteurs ont déterminé une section efficace de destruction par les UV  $\sigma_{d,UV} = 1.0 \cdot 10^{-19} \text{ cm}^2/\text{photon}$ . Ils ont aussi observé que ce processus de déshydrogénation reste efficace lorsque qu'une fine couche de glace recouvre les grains, sans importante modification de  $\sigma_{d,UV}$ .

### 8.5.7.1 Milieu interstellaire diffus

Dans le MIS diffus, le flux du rayonnement ISRF valant environ  $8 \cdot 10^7 \text{ photons cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$  [Mathis *et al.* 1983], associé à la valeur  $\sigma_{d,UV}$  déterminée par [Mennella *et al.* 2001], résulte en un temps caractéristique de destruction par l'exposition au rayonnement UV  $t_{d,UV}^{diffuse} = 4 \cdot 10^3$  ans. Ce temps est bien plus court que le temps de destruction par les rayons cosmiques. Le processus de destruction de la bande d'absorption à  $3.4 \mu\text{m}$  par les rayons cosmiques est donc négligeable dans le MIS diffus par rapport à l'effet des UV. L'omniprésence de la bande aliphatique à  $3.4 \mu\text{m}$  dans le milieu interstellaire diffus requiert un processus de formation efficace actif dans ces régions pour contrebalancer la destruction par les UV et les rayons cosmiques. C'est très probablement l'exposition aux atomes d'hydrogène qui génère cette reformation [Mennella *et al.* 1999, Mennella *et al.* 2002, Mennella 2006]. [Mennella 2006] ont déterminé une section efficace de formation de liaisons C-H aliphatiques par l'exposition aux atomes H valant  $\sigma_{f,H} = 1.7 \cdot 10^{-18} \text{ cm}^2/(\text{atome H})$  pour une température des atomes H de 100 K dans le MIS diffus (cette section efficace diminue lorsque la température baisse). Un flux de  $8 \cdot 10^6$  atomes  $\text{cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$  dans les nuages diffus [Sorrell 1990] donne lieu à un temps de formation de l'ordre de  $t_{f,H}^{diffuse} = 2 \cdot 10^3$  ans. Par conséquent, dans le milieu interstellaire diffus, l'évolution de l'absorption interstellaire à  $3.4 \mu\text{m}$  est gouvernée par sa formation due à l'exposition aux atomes

Phase interstellaire		Diffus	Interface <sup>a</sup>	Dense
				
Extinction visuelle	$A_V$ (mag)	$< 10^{-4}$	$10^{-4} - 1$	$> 2 - 3$
Densité	$n$ (cm <sup>-3</sup> )	$1 - 100$	$10^2 - 10^4$	$10^4 - 10^8$
Energie déposée		UV $\gg$ CR	UV $>$ CR	UV <sub>CR induced</sub> $\sim 10 \times$ CR <sup>b</sup>
Hydrogène atomique ou moléculaire		H $\gg$ H <sub>2</sub>	H $<$ H <sub>2</sub>	H $\ll$ H <sub>2</sub>
Temps dynamique	$t_{dyn}$ (ans)	$10^8$ <sup>c</sup>	$\lesssim 10^7$ <sup>d</sup>	$\sim$ qq $10^7$ <sup>e</sup>
Temps de destruction par les CR	$t_{d,CR}$ (ans)	$10^8$	$10^8$	$10^8$
Temps de destruction par les UV	$t_{d,UV}$ (ans)	$4 \cdot 10^3$ <sup>f</sup>	$\gtrsim 4 \cdot 10^3 \exp(A_V)$	$\gtrsim 10^7$ <sup>g</sup>
Temps de formation par l'H atomique	$t_{f,H}$ (ans)	$2 \cdot 10^3$ <sup>h</sup>	moins efficace que dans le MIS diffus	inefficace ? <sup>i</sup>
Destruction / Formation		Formation efficace	Destruction efficace ?	Destruction lente

<sup>a</sup> La figure est issue de [Le Petit *et al.* 2006]. La zone bleue montre la zone de transition entre l'hydrogène atomique et moléculaire.

<sup>b</sup> Le rayonnement UV local induit par les CR dépose plus d'énergie que les CR eux-mêmes [Shen *et al.* 2004]. Cependant, la profondeur de pénétration des photons est plus petite. C'est donc le manteau de glace qui est majoritairement altéré par les UV, et la partie interne des grains est principalement altérée par les CR.

<sup>c</sup> e.g., [Jones *et al.* 1994].

<sup>d</sup> e.g., [Goldsmith *et al.* 2007, Glover & Mac Low 2007].

<sup>e</sup> [McKee 1989, Draine 1990, Jones *et al.* 1994, Tassis & Mouschovias 2004, Mouschovias *et al.* 2006, Elmegreen 2007].

<sup>f</sup> [Mennella *et al.* 2001] ( $\sigma_{d,UV} = 1.0 \cdot 10^{-19}$  cm<sup>2</sup>/photon), [Mathis *et al.* 1983] (flux de l'ISRF de  $8 \cdot 10^7$  photons cm<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup>).

<sup>g</sup> [Mennella *et al.* 2001] ( $\sigma_{d,UV} = 1.0 \cdot 10^{-19}$  cm<sup>2</sup>/photon), [Prasad & Tarafdar 1983] (flux du rayonnement UV interne dû aux CR de  $10^3 - 10^4$  photons cm<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup>) => temps caractéristique de destruction par ces UV  $\sim 10^7 - 10^8$  ans. Lorsque les manteaux de glace apparaissent sur les grains ( $A_V \gtrsim 3$ , [Whittet *et al.* 1988, Smith *et al.* 1993, Murakawa *et al.* 2000]), le matériau réfractaire est partiellement protégé des UV par les interactions photochimiques avec le manteau.

<sup>h</sup> [Mennella 2006] ( $\sigma_{f,H} = 1.7 \cdot 10^{-18}$  cm<sup>2</sup>/H atom), [Sorrell 1990] (flux de  $8 \cdot 10^6$  H atoms cm<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup> dans le MIS diffus).

<sup>i</sup> Voir les 2<sup>e</sup> et 3<sup>e</sup> paragraphes de la section 8.5.7.2 pour plus de détails.

TABLE 8.9 – Table synthétique des temps caractéristiques de destruction et de formation de la composante hydrocarbonée aliphatique dans les différentes phases du MIS. Les temps de destruction et formation peuvent être comparés aux temps dynamiques, c'est-à-dire le temps approximatif passé dans chacune de ces phases.

d'hydrogène qui est légèrement plus efficace que la destruction causée par les photons UV.

### 8.5.7.2 Nuages denses

Dans les nuages denses, la bande d'absorption à  $3.4 \mu\text{m}$  dont le profil est associé aux groupements méthyle et méthylène, et caractéristique du MIS diffus, n'est pas observée. Des observations avec des forts rapports signal/bruit montrent que la limite supérieure sur la profondeur optique de la bande à  $3.4 \mu\text{m}$  est faible dans les nuages moléculaires [Muñoz Caro *et al.* 2001]. Cela suggère que les porteurs de cette signature spectrale sont absents de ces régions, ou présents en très faibles quantités tout au plus.

Dans les régions interstellaires denses, les processus de formation de la bande  $3.4 \mu\text{m}$  n'opèrent plus ou sont très peu efficaces à cause de différents facteurs : (1) la plupart de l'hydrogène est sous forme moléculaire, et le flux d'atomes H est réduit de deux ordres de grandeurs en comparaison avec le MIS diffus. (2) Dans les nuages denses, les grains de poussières sont recouverts d'un manteau de glace qui empêche une hydrogénation efficace de l'intérieur du grain. (3) La section efficace de formation est probablement réduite par trois ordres de grandeur lorsque les atomes d'hydrogène passent de la température du MIS diffus à une température de 10 K dans les nuages denses [Mennella 2006]. Par conséquent, la formation de liaisons C-H aliphatiques est probablement inefficace dans les régions interstellaires denses. Par contre, la destruction par les rayons cosmiques continue à opérer dans ces régions (la présence d'une couche de glace ne semble pas affecter la section efficace de destruction par les CR comme le montrent [Mennella *et al.* 2003], ce qui est logique étant donné leur grand pouvoir de pénétration).

Récemment, une autre hypothèse concernant les effets de l'exposition aux atomes d'hydrogène dans les régions denses a été proposée par [Mennella 2008] et [Mennella 2010]. Il a exposé des particules de carbone couvertes d'une couche de glace d'eau à des atomes d'hydrogène. Ces expériences, effectuées dans des conditions simulant celles du milieu interstellaire dense, n'ont pas montré de formation de liaisons C-H aliphatiques dans des groupements  $\text{CH}_2$  et  $\text{CH}_3$  (c'est-à-dire celles responsables de la bande d'absorption à  $3.4 \mu\text{m}$  observée dans le MIS diffus), mais l'apparition d'une large bande d'absorption autour de  $3.47 \mu\text{m}$ . L'auteur assigne cette bande aux vibrations d'élongation des liaisons C-H tertiaires (c'est-à-dire les carbones  $\text{sp}^3$  reliés à un seul atome d'hydrogène) et propose que la bande d'absorption interstellaire à  $3.4 \mu\text{m}$  band observée dans les régions diffuses devienne la bande à  $3.47 \mu\text{m}$  dans les nuages denses par altération interstellaire.

Bien que la destruction de la bande à  $3.4 \mu\text{m}$  soit dominante dans les régions interstellaires denses, les travaux présentés dans ce chapitre montrent que les rayons cosmiques seuls ne semblent pas pouvoir expliquer l'apparente disparition de cette signature spectrale durant le temps de vie typique d'un nuage interstellaire. Le rayonnement UV galactique ne peut pas pénétrer l'intérieur des nuages denses et donc ne peut pas engendrer de destruction additionnelle. Cependant, l'interaction des rayons cosmiques galactiques avec le milieu interstellaire génère un champ de rayonnement UV interne dû à la fluorescence des molécules  $\text{H}_2$  induite par



les CR [Prasad & Tarafdar 1983]. Le flux UV correspondant est estimé approximativement à  $10^3 - 10^4$  photons  $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ . Le temps de destruction associé vaut  $\sim 10^7 - 10^8$  ans. Au dessus d'une certaine extinction  $A_V$ , lorsque les glaces se forment, une majorité de ces photons UV est probablement absorbée par les manteaux de glace et n'affecte pas la composante aliphatique des grains. Le temps de destruction par ce rayonnement UV interne aux nuages denses est donc supérieur à  $\sim 10^7 - 10^8$  ans. Par contre, lorsque la glace ne couvre pas encore la surface des grains, c'est-à-dire pour  $A_V \lesssim 3$  [Whittet *et al.* 1988, Smith *et al.* 1993, Murakawa *et al.* 2000], l'effet de destruction des UV induits par les CR peut être 10 fois plus fort que celui des rayons cosmiques eux-mêmes. Ce rayonnement UV interne est donc un processus de destruction par les rayons cosmiques indirect non négligeable, mais ne semble toujours pas suffisant pour pouvoir expliquer l'entière (ou presque entière) disparition de la bande d'absorption interstellaire caractéristique des a-C:H.

### 8.5.7.3 Interfaces entre régions diffuses et denses

Il semble que la disparition de la bande à  $3.4 \mu\text{m}$  ne puisse avoir lieu ni dans le MIS diffus, ni dans les nuages denses, mais plutôt dans les régions intermédiaires, telles que les nuages transluscents ou les régions dominées par le rayonnement (PDR pour *photon dominated regions*). Dans de telles régions, les atomes d'hydrogène recombinent en  $\text{H}_2$  et la quantité d'hydrogène sous forme atomique commence à chuter pour des extinctions visuelle  $A_V \sim 10^{-4} - 10^{-3}$  [Le Petit *et al.* 2006]. Cette faible abondance d'atomes H rend le processus de "re-hydrogénation" moins efficace dans ces régions, et le temps caractéristique de formation devient probablement bien plus long que dans le MIS diffus.

Le champ de rayonnement UV externe décroît avec l'extinction comme  $\exp(-A_V)$ . Entre  $A_V \sim 10^{-3}$  et une extinction  $A_V$  de quelques magnitudes environ, le flux d'atomes d'hydrogène est beaucoup plus bas que dans le MIS diffus, et le flux de photons UV reste assez intense pour déshydrogéner les porteurs de la bande à  $3.4 \mu\text{m}$  (Tableau 8.9). Dans ces régions intermédiaires, la destruction de la composante aliphatique est peut-être assez efficace pour faire disparaître les signatures spectrales associées, et ainsi justifier leur non observation dans les régions denses. Malheureusement, les observations de ces interfaces entre le MIS diffus et les nuages denses ne permettent pas d'obtenir facilement des contraintes sur ce scénario. En effet, dans ces régions, une éventuelle absorption à  $3.4 \mu\text{m}$  serait probablement masquée par d'intenses bandes d'émission (des PAH par exemple). [Mennella *et al.* 2001, Mennella *et al.* 2003] ont proposé comme explications alternatives la circulation du matériau aliphatique dans le nuage dense (puisque'ils ont estimé que seulement 1% du temps de vie du nuage passé au bord du nuage est nécessaire pour altérer la poussière par le rayonnement UV externe) ou la pénétration des UV externes dans une structure en filaments du nuage.



## 8.6 Conclusion

Nous avons effectué des expériences d'irradiation par des ions énergétiques (H, He, C, Si, Ni, I, de 200 keV à 160 MeV) d'analogues interstellaires carbonés (a-C:H et suies). La déshydrogénation progressive de ces matériaux induite par les irradiations a été mesurée grâce aux bandes d'absorption dans l'IR proche et moyen correspondant aux vibrations des C-H aliphatiques. Ce sujet avait été précédemment exploré par [Mennella *et al.* 2003] au travers d'irradiation à relativement basse énergie par des ions He à 30 keV. Les effets des rayons cosmiques, qui sont des ions de plus fortes énergies, sont extrapolés. Notre étude poursuit ce travail et développe en particulier les points suivants : (i) différents éléments et énergies ont été utilisés, permettant ainsi d'explorer une large gamme de pouvoirs d'arrêt électroniques (de quelques  $10^{-2}$  à  $10^2$  MeV/(mg/cm<sup>2</sup>) environ), comparables à ceux des rayons cosmiques. (ii) Les paramètres caractéristiques de destruction des liaisons C-H aliphatiques (section efficace de destruction et quantité d'hydrogène résiduelle à fluence élevée) ont été déterminés à l'aide d'un modèle dit de recombinaison. Ce modèle explique la déshydrogénation observée par la recombinaison des atomes d'hydrogène libérés par le passage d'ions énergétiques dans le matériau irradié. (iii) Nos expériences nous ont permis de déduire la variation de ces paramètres avec le pouvoir d'arrêt électronique. (iv) En particulier, la quantité résiduelle d'hydrogène observée à fluence élevée, en accord avec le modèle de recombinaison, a été prise en compte dans notre analyse et nous avons trouvé que les volumes de recombinaison sont reliés au pouvoir d'arrêt électronique par une relation linéaire. Ces résultats ont permis de déduire l'effet des rayons cosmiques sur la composante aliphatique hydrogénée des poussières interstellaires. (v) Bien que les a-C:H et les suies possèdent des structures et des taux d'hydrogénation très différents, aucune différence notable de leur paramètre de destruction n'a été observée. Cela suggère que, même si les porteurs de la bande à  $3.4 \mu\text{m}$  étaient légèrement différents de nos a-C:H, les résultats déduits de ces expériences resteraient valables.

Ce travail a permis de montrer que la destruction des liaisons C-H aliphatiques par les rayons cosmiques a lieu en un temps caractéristique de quelques  $10^8$  ans, mais que cette destruction n'est que partielle, même à des échelles de temps plus longues. La contribution des ions lourds, et du fer en particulier, à cette destruction est importante. Nous avons comparé ces résultats à l'altération de cette même composante par les photons UV, et à sa (re)formation par l'exposition aux atomes d'hydrogène, dans les différentes phases du milieu interstellaire. Comme l'ont montré [Mennella *et al.* 2003], la destruction par les rayons cosmiques dans le MIS diffus est négligeable en comparaison de la destruction provoquée par le rayonnement UV. Dans ces régions, l'hydrogénation par les atomes H excède la déshydrogénation, expliquant ainsi les observations de la bande à  $3.4 \mu\text{m}$ . Dans les nuages denses, la formation par les atomes d'hydrogène n'a plus lieu, le champ de rayonnement UV galactique ne peut pas pénétrer, et seuls les rayons cosmiques peuvent faire évoluer les grains de poussières (directement et indirectement par les photons UV internes qu'ils génèrent). La bande à  $3.4 \mu\text{m}$  n'est pas observée dans les régions denses, mais les rayons cosmiques ne semblent pas être assez efficaces pour faire *totale-*ment disparaître cette signature spectrale omniprésente dans le MIS diffus. Nous en concluons

donc que cette destruction ou modification de cette composante aliphatique hydrogénée doit probablement avoir lieu dans les régions intermédiaires, où la destruction par les photons UV et les rayons cosmiques excède la formation par les atomes d'hydrogène.

L'irradiation de la poussière interstellaire par les rayons cosmiques n'est pas le processus de déshydrogénation le plus efficace, notons cependant que les CR sont une des rares sources d'énergie pouvant pénétrer les nuages interstellaires les plus denses, et que ce processus de déshydrogénation par les rayons cosmiques se produit donc dans toutes les régions interstellaires. De nouvelles études devraient nous aider à comprendre plus en détails les effets des rayons cosmiques sur l'évolution de la poussière interstellaire. Dans les expériences présentées ici, nous avons pris soin d'irradier nos échantillons avec de faibles flux de sorte à éviter leur chauffage. Même si le rôle de la température n'est sans doute pas critique quand au dépôt d'énergie considéré ici, il serait intéressant d'effectuer ce genre d'expériences dans des conditions plus proches de celles du MIS, c'est-à-dire à basse température ; le fait de diminuer la mobilité de l'hydrogène pourrait influencer les paramètres de destruction. L'effet de destruction des électrons secondaires (créés par les rayons cosmiques) n'a pas été pris en compte ici. Ces électrons de faible énergie ( $\sim 30$  eV) ont une faible profondeur de pénétration. Dans les régions denses, ils sont stoppés par le manteau de glace, et n'altèrent que la surface des grains dans les régions diffuses. Bien que l'altération par ces électrons secondaires ne concerne donc qu'une faible proportion de la masse de poussière interstellaire, il serait intéressant d'explorer et de prendre en compte cet effet. Le modèle de recombinaison que nous avons utilisé pour modéliser le processus de déshydrogénation est valide quand l'interaction de l'ion peut être considérée continue dans le matériau le long de sa trace. Ce n'est peut-être plus le cas pour les ions ayant un faible pouvoir d'arrêt. De nouvelles expériences d'irradiation avec de tels ions, menées jusqu'à de fortes fluences (c'est-à-dire grâce à de longues irradiations), permettraient de contraindre le comportement asymptotique à bas  $S_e$ . Il apparaît important d'explorer quelles sont les limites du modèle de recombinaison. Enfin, dans ce chapitre, seule la déshydrogénation a été analysée en profondeur, et les autres modifications induites par les irradiations n'ont été qu'évoquées. Leur analyse prochaine permettra d'avoir une vision plus globale de l'évolution de la structure des matériaux irradiés.

# Conclusion

L'objectif de cette thèse était d'étudier les carbones amorphes hydrogénés interstellaires. Cette composante de la poussière carbonée s'est avérée être très importante au cours des dernières années, notamment au travers des observations galactiques, mais aussi plus récemment des nombreuses détections extragalactiques. La caractérisation de ces a-C:H interstellaires, de leurs propriétés et de leur évolution est donc essentielle et nécessaire pour pouvoir interpréter et comprendre les processus dont le milieu interstellaire est le siège. Cette thèse contribue à ce travail de caractérisation des carbones amorphes hydrogénés interstellaires au travers d'observations de ces poussières d'une part, et d'expériences permettant la synthèse et l'étude d'analogues en laboratoire d'autre part.

Une première partie de mon travail de thèse (Chapitre 4) a été consacrée à l'observation de carbones amorphes hydrogénés du milieu interstellaire diffus galactique, grâce au télescope Gemini North et à l'instrument NIRI. Les spectres acquis entre 3 et 4  $\mu\text{m}$  ont permis la détection de la bande à 3.4  $\mu\text{m}$ , caractéristique des elongations C-H aliphatiques des a-C:H, avec un rapport signal sur bruit suffisant pour que l'on distingue les sous-structures de cette bande. Cette signature a été détectée le long des trois lignes de visée observées vers les sources S7, S10 et S11 de l'amas de protoétoiles associées à IRAS 18511+0146. La contribution à 3.47  $\mu\text{m}$  du milieu dense a été estimée et pour la première fois systématiquement retirée des spectres observés afin d'obtenir la signature des a-C:H, et de la corrélérer avec l'extinction, en prenant en compte la contribution du MIS diffus uniquement. Ces observations m'ont permis de montrer que les profondeurs optiques de la bande à 3.4  $\mu\text{m}$  associées à ces lignes de visée proches les unes des autres sont (i) d'une part particulièrement fortes, et (ii) sont d'autre part similaires les unes aux autres, indiquant que ces lignes de visée ne sont pas des cas particuliers et sont représentatives du milieu interstellaire sondé dans cette direction. Ces lignes de visée constituent les plus fortes profondeurs optiques à 3.4  $\mu\text{m}$  détectées dans la Galaxie en dehors du centre galactique. De plus, les différents arguments permettant d'estimer la distance et l'extinction vers IRAS 18511+0146 ont été discutés, et il semble que cette forte profondeur optique ne coïncide pas avec la profondeur de bande à 3.4  $\mu\text{m}$  attendue avec la distance la plus probable de cet amas. En faisant l'hypothèse du rapport extinction/distance interstellaire moyen, la corrélation habituellement observée dans le milieu interstellaire local entre la profondeur optique de la bande à 3.4  $\mu\text{m}$  et l'extinction visuelle prédit une bande d'absorption environ trois fois moins intense que celle observée. Ce travail met donc en avant la particularité de cette ligne de visée, qui se démarque soit par sa bande à 3.4  $\mu\text{m}$  exceptionnellement forte, soit par son rapport extinction/distance particulièrement élevé. La profonde bande des C-H aliphatiques observée le long de ces lignes de visée en font une direction remarquable et privilégiée pour l'observation des a-C:H galactiques.

Dans une seconde partie, les a-C:H d'intérêt interstellaire ont été étudiés expérimentalement grâce à la synthèse et la caractérisation d'analogues de laboratoire de cette composante de poussières interstellaires. Ces analogues ont été formés sous forme de film sur un substrat,

au moyen d'un plasma d'hydrocarbure (Chapitre 5). De nombreux tests et améliorations du montage expérimental ont permis d'aboutir à l'élaboration de protocoles expérimentaux permettant la synthèse de différents types d'a-C:H. Plus de 150 échantillons ont été produits et analysés, notamment en mesurant leur transmission UV-visible et infrarouge (Chapitre 6). Ces multiples analyses ont conduit à l'obtention d'informations sur les propriétés spectrales et la structure des a-C:H produits. Les différents échantillons ont été en particulier différenciés par la valeur de leur gap optique. Certains de ces a-C:H possèdent un spectre infrarouge similaire à ceux des a-C:H interstellaires et constituent donc d'excellents analogues de laboratoire de ces poussières.

L'émission de photoluminescence des a-C:H (Chapitre 7) est l'un des aspects abordés expérimentalement au cours de cette thèse grâce à ces analogues de laboratoire. J'ai mesuré la photoluminescence visible des échantillons de carbones amorphes hydrogénés résultant de l'absorption de photons UV-visibles, et comparé les caractéristiques spectrales de la bande d'émission entre les différents a-C:H. J'ai pu évaluer les rendements absolus et intrinsèques de photoluminescence, soigneusement calculés à partir de ces mesures, en prenant en compte les différents effets optiques dus à la géométrie des échantillons (dont l'influence s'est révélée importante). Pour la première fois, la photoluminescence des a-C:H d'intérêt astrophysique a été mesurée pour différentes longueurs d'onde d'excitation. Etant donné que les carbones amorphes hydrogénés sont une composante importante des poussières du milieu interstellaire diffus, il était nécessaire d'effectuer cette étude systématique de la photoluminescence des a-C:H, pour pouvoir évaluer et caractériser leur contribution à l'émission interstellaire. Par ailleurs, il est possible que cette PL contribue à l'émission rouge étendue, observée dans de nombreux environnements interstellaires, mais dont les porteurs ne sont toujours pas identifiés. Puisqu'aucun des candidats ne semble *a priori* satisfaire parfaitement les conditions imposées par les observations de l'ERE, il s'avère essentiel de mesurer soigneusement les propriétés de PL de chaque candidat et de comparer chaque caractéristique aux observations de l'ERE. Cette comparaison entre la PL des a-C:H et l'ERE a donc été discutée. Pour l'ERE comme pour la PL des a-C:H, les rendements et les largeurs de la bande d'émission sont corrélés à la longueur d'onde centrale d'émission. La PL des a-C:H est efficace pour une large gamme d'excitation correspondant à celle de l'ERE. La PL des a-C:H comporte donc de nombreux points communs avec l'ERE, mais elle présente aussi des difficultés à satisfaire simultanément les propriétés spectrales de l'ERE et le fort rendement déduit des observations du MIS diffus. Cette étude montre cependant qu'il faudrait explorer plus en détails plusieurs aspects pouvant affecter la PL des a-C:H (contenu en oxygène, température) ou les caractéristiques apparentes de l'ERE (géométrie et taille des porteurs par exemple), et qui sembleraient avoir pour effet de rapprocher les propriétés de l'ERE et des a-C:H.

L'évolution des a-C:H interstellaires et la problématique de la disparition de la bande à 3.4  $\mu\text{m}$  dans les régions denses du milieu interstellaire ont aussi été explorées au cours de cette thèse (Chapitre 8). L'évolution des poussières interstellaires hydrocarbonées sous l'effet des rayons cosmiques a été caractérisée par des expériences d'irradiation des analogues de laboratoire. En usant d'une gamme d'ions énergétiques, produits à l'accélérateur Tandem d'Orsay, des dépôts

d'énergie similaires à ceux des rayons cosmiques ont été employés. Grâce à la spectroscopie infrarouge mesurée *in situ* au cours des irradiations, nous avons pu suivre le comportement des a-C:H, mais aussi de suies, nous permettant ainsi de tester l'influence des irradiations sur des structures carbonées différentes et allant d'hybridation fortement  $sp^3$  vers  $sp^2$ . La déshydrogénation induite par ces irradiations, observée au travers de la diminution progressive des modes de vibration IR des liaisons C-H aliphatiques, a été analysée à l'aide d'un modèle décrivant la perte d'hydrogène par la recombinaison des atomes d'hydrogène libérés par le passage des ions pour former la molécule  $H_2$ , qui s'échappe des analogues par la suite. Les résultats de cette analyse des mesures expérimentales, obtenus sur une large gamme de pouvoirs d'arrêt électroniques, ont permis, en les couplant à un modèle de la distribution des rayons cosmiques, de déduire l'évolution des signatures aliphatiques interstellaires et la déshydrogénation induites par l'ensemble des éléments et énergies du rayonnement cosmique interstellaire. Le temps caractéristique de destruction de cette composante a ainsi été estimé à quelques centaines de millions d'années. Les résultats indiquent aussi que la destruction par les rayons cosmiques ne peut pas être complète même à des échelles de temps plus longues à cause de la quantité résiduelle d'hydrogène observée à haute fluence. Les effets de l'irradiation par les rayons cosmiques ont été comparés à ceux de l'exposition aux photons UV et aux atomes d'hydrogène. Dans le milieu interstellaire diffus, le flux d'hydrogène atomique compense la destruction par les UV et les rayons cosmiques, et permet la formation des a-C:H. Par contre, dans les nuages denses, la reformation de cette composante est beaucoup moins active, et le rayonnement cosmique, qui peut pénétrer, domine. Les rayons cosmiques et les photons UV qu'ils génèrent engendrent une destruction des a-C:H interstellaires et des signatures associées, mais dans des temps qui semblent trop longs pour expliquer l'absence de bande à  $3.4\ \mu m$  dans les régions denses. Au regard de ce travail, nous avons proposé que la destruction de la composante aliphatique hydrogénée ait lieu dans les régions intermédiaires où la formation par les atomes d'hydrogène moins abondants n'est pas aussi efficace que la destruction par les photons UV encore nombreux.



# Perspectives

Ce travail de thèse rassemble des efforts expérimentaux et observationnels apportant certaines réponses aux caractéristiques et processus d'évolution de la matière carbonée interstellaire dans les milieux diffus et denses. Les réponses apportées ont suscité de nombreuses questions supplémentaires qui ouvrent de nouvelles perspectives pour un travail futur, à plus ou moins longs termes.

Concernant les observations des a-C:H interstellaires, les lignes de visée en direction d'IRAS 18511+0146 et des sources du même amas se sont avérées être particulièrement intéressantes pour l'étude des carbones amorphes hydrogénés et des poussières interstellaires en général. Afin de pouvoir interpréter complètement la profonde bande à  $3.4\ \mu\text{m}$  observée dans ces directions, la distance vers cet amas doit être confirmée par des mesures additionnelles. Il serait aussi intéressant d'observer d'autres composantes de poussières du milieu interstellaire diffus le long de ces lignes de visée. Par exemple, l'observation de la profondeur de la bande d'absorption à  $9.7\ \mu\text{m}$  des silicates permettrait de fournir des informations additionnelles sur la particularité de ces lignes de visée en recherchant par exemple si le rapport  $A_V/\tau_{9.7}$  est inhabituel. Cela permettrait de vérifier si cette forte absorption est spécifique aux a-C:H ou propre à la poussière en général le long de ces lignes de visée. L'observation de sources additionnelles dans cet amas, ainsi qu'une augmentation du rapport signal/bruit des spectres permettraient de discuter la sous-structure de la bande à  $3.4\ \mu\text{m}$  et les rapports  $\text{CH}_2/\text{CH}_3$  associés, et de les comparer avec les autres observations. De manière plus générale, l'observation de nouvelles directions galactiques présentant la signature des a-C:H, ou la réobservation des sources pour lesquelles le rapport signal/bruit donne actuellement des résultats trop imprécis, permettrait de mieux contraindre la distribution de cette composante dans la Voie Lactée. Dans ce but, une proposition d'observation d'une ligne de visée dans une autre direction hors du centre galactique et dans laquelle la présence d'une bande à  $3.4\ \mu\text{m}$  potentielle observée à bas rapport signal/bruit, vient d'être acceptée.

La production et la caractérisation d'analogues de laboratoire de ces a-C:H interstellaires doivent être poursuivies. L'obtention et l'analyse des constantes optiques de ces matériaux, dont l'importance interstellaire est clairement établie depuis quelques années, sont importantes et sont en cours. Nous avons ainsi vu que la détermination de l'indice optique des a-C:H, au travers des franges d'interférences présentes dans leur spectre, est possible mais que des mesures précises et dédiées, avec un microscope infrarouge, seront nécessaires pour obtenir des résultats plus précis. Une analyse plus approfondie des bandes d'absorption IR mesurées fournira des informations plus quantitatives sur la structure de ces a-C:H, qui pourront être mises en relation avec le gap des matériaux. Il est aussi prévu d'essayer de synthétiser d'autres types d'a-C:H, pour étendre la gamme de matériaux vers des phases plus aromatiques, grâce à des conditions de production différentes.

Dans le chapitre 7, nous avons vu que l'étude de la photoluminescence des a-C:H devra être approfondie, notamment pour pouvoir déterminer si l'émission rouge étendue est générée par



les carbones amorphes hydrogénés interstellaires. Il faudra mesurer et caractériser cette PL en fonction de la température. De plus, les petites quantités d'atomes d'oxygène présentes dans la structure du matériau affectent l'émission des  $\alpha$ -C:H, et en particulier abaissent le rendement de PL. Il faudra donc s'affranchir le plus possible de cette contamination. Dans l'idéal, un montage expérimental avec un meilleur vide et un système de refroidissement couplés, permettant à la fois la production des échantillons et la mesure de PL *in situ* serait optimal pour ce genre d'étude. Comme avec nos échantillons d' $\alpha$ -C:H sous forme de films, des effets optiques dus à la géométrie des porteurs de l'ERE et à l'auto-absorption dans ces grains existent. Ces effets ont pour conséquences des différences probables entre les propriétés de l'ERE observées et celles de la PL intrinsèque des porteurs de l'ERE. Il apparaît important d'intégrer les résultats expérimentaux de la PL intrinsèque des candidats à l'ERE dans un modèle tenant compte des conditions de taille, géométrie, température, rayonnement, etc. des poussières responsables de l'ERE pour permettre une comparaison plus directe avec les observations. Nous avons mis en avant la difficulté d'estimer correctement les propriétés de l'ERE à partir des observations, notamment concernant les estimations des rendements de PL et du rayonnement absorbé par les porteurs de l'ERE. Etant donné que le critère de rendement constitue l'une des contraintes les plus fortes, de nouvelles observations de l'ERE, notamment dans le MIS diffus car ces régions ont été peu explorées par les observateurs, seraient appréciables. Finalement, pour pouvoir formellement identifier les porteurs de l'ERE, une étude précise et systématique de la PL de chaque candidat, discutant les modifications des propriétés de PL entre les conditions de laboratoire et celle du MIS, est absolument nécessaire puisqu'à ce jour, en ne tenant pas compte de ce niveau de considération, aucun candidat ne correspond complètement aux critères déduits des observations de l'ERE.

Les expériences d'irradiation ionique des  $\alpha$ -C:H ont fourni de nombreuses informations sur la déshydrogénation de ces matériaux observée au travers de la diminution des bandes d'absorption caractéristiques des vibrations des liaisons C-H aliphatiques. La prochaine étape consistera à analyser en profondeur les autres modifications des matériaux observées dans les spectres IR acquis lors de ces expériences. Notamment, nous analyserons les liaisons qui apparaissent au cours des irradiations. Cela permettrait une compréhension plus globale de la restructuration du matériau irradié. En comparant la formation des bandes d'absorption aux observations interstellaires, des contraintes supplémentaires sur la contribution des rayons cosmiques à l'évolution des  $\alpha$ -C:H interstellaires pourront probablement être apportées. Concernant les expériences effectuées, il serait utile de les compléter par des irradiations plus longues pour atteindre des fluences plus fortes, et ainsi mieux contraindre les valeurs de l'asymptote du contenu en hydrogène. Ces expériences seraient nécessaires surtout pour des ions dont le pouvoir d'arrêt électronique est faible. Il serait intéressant de mener des expériences d'irradiation à basse température et d'explorer l'influence de ce paramètre. Pour déduire de manière plus certaine les effets de l'ensemble des rayons cosmiques interstellaires, des contraintes observationnelles plus précises sur leur flux et leur distribution (d'abondance et en énergie), notamment au travers de la mesure des taux d'ionisation interstellaires ou le franchissement de l'héliosphère par les sondes Voyager par exemple, seront précieuses. Les différents processus d'altération des  $\alpha$ -

C:H (comme l'exposition aux UV, aux rayons cosmiques, et aux atomes d'hydrogène) opérant conjointement dans le milieu interstellaire, il est important de poursuivre l'étude de chacun de ces processus et de confronter leurs effets. Ainsi, on pourrait chercher à quantifier la contribution à la formation de molécule de  $H_2$  résultant de l'irradiation des a-C:H par les rayons cosmiques.

Plus généralement, de nombreuses questions persistent à propos des carbones amorphes hydrogénés interstellaires. Sous quelles formes ces poussières d'a-C:H se trouvent-elles (tailles, géométrie, ...) ? Quel est leur lien avec d'autres formes de poussières interstellaires carbonées, comme les PAH par exemple ? L'étude des carbones amorphes hydrogénés interstellaires, au travers d'observations, de modèles et d'expériences de laboratoire, doit donc être poursuivie. Au cours des prochaines années, je m'intéresserai aussi à d'autres composantes de la poussière interstellaire. La production de silicates au moyen d'un plasma a été très peu explorée jusqu'à présent pour produire des analogues interstellaires. Cette synthèse d'analogues et leur étude fait partie d'un projet que je mènerai prochainement au NASA Goddard Space Flight Center.



# Annexes



# Modèle optique de l'émission d'un film sur un substrat

---

## A.1 Emission par un dipôle électrique dans un milieu infini

Nous allons d'abord étudier le champ électrique  $\vec{E}$  généré dans un milieu homogène infini par un seul dipôle électrique, dont le moment dipolaire est  $\vec{p}$ , et sa décomposition en ses composantes polarisées s et p. La configuration correspondante est décrite par la Fig. A.1 et les différentes notations utilisées sont listées dans le Tableau A.1.

L'indice de réfraction  $\tilde{n}_j$  est complexe si le milieu j est absorbant. Dans le cas où l'on considère le milieu j non absorbant, la partie imaginaire de l'indice,  $\kappa_j$ , est nulle. L'indice de réfraction  $\tilde{n}_j$  est donné par la relation A.1, et le vecteur d'onde  $\tilde{k}_j$  (dans la direction de l'observateur) est relié à l'indice de réfraction complexe par l'Eq. A.2 :

$$\tilde{n}_j = n_j + i \kappa_j \quad (\text{A.1})$$

$$\tilde{k}_j = \tilde{n}_j \cdot \frac{2\pi}{\lambda} \quad \text{où } \lambda \text{ est la longueur d'onde dans le vide.} \quad (\text{A.2})$$

### A.1.1 Polarisation du champ électrique

Le champ électrique  $\vec{E}$  est perpendiculaire à la direction de l'observation  $\vec{k}$  et peut être décomposé en deux composantes orthogonales, correspondant aux deux polarisations : la polarisation s est perpendiculaire au plan d'observation, la polarisation p est dans ce plan :

$$\vec{E}^{(s)} = E^{(s)} \vec{u}_y \quad (\text{A.3})$$

$$\vec{E}^{(p)} = E^{(p)} (-\cos \alpha \vec{u}_x + \sin \alpha \vec{u}_z) \quad (\text{A.4})$$

$$E^{(s)} = E \sin \psi \quad \text{et} \quad E^{(p)} = E \cos \psi \quad (\text{A.5})$$

$$\vec{E} = E \begin{vmatrix} -\cos \psi \cdot \cos \alpha & \vec{u}_x \\ \sin \psi & \vec{u}_y \\ \cos \psi \cdot \sin \alpha & \vec{u}_z \end{vmatrix} \quad (\text{A.6})$$

$$E^{(s)} = E_y \quad \text{et} \quad E^{(p)} = E_z \sin \alpha - E_x \cos \alpha \quad (\text{A.7})$$

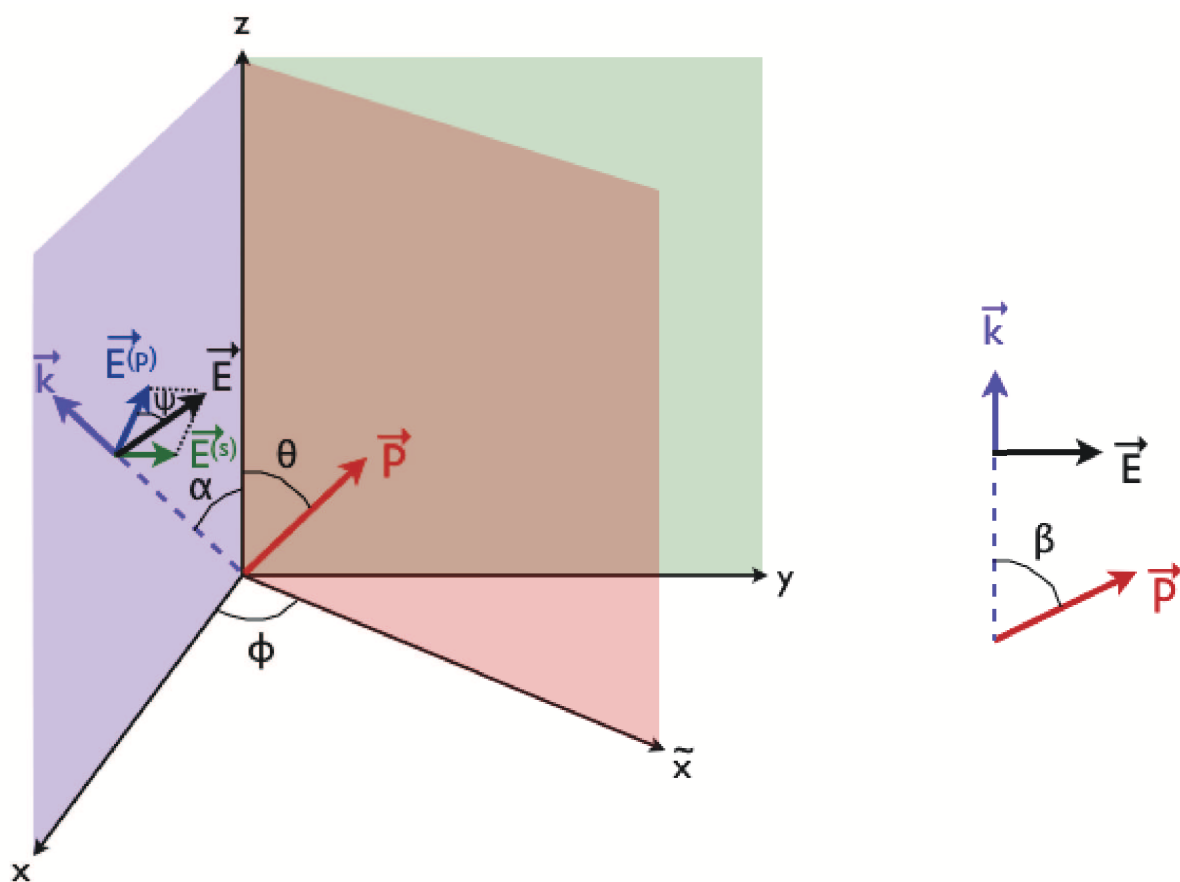


FIGURE A.1 – Système de coordonnées et angles utilisées pour calculer le champ électrique  $\vec{E}$ . Ce champ  $\vec{E}$  est créé par un dipôle électrique  $\vec{p}$ , et est composé par ses polarisations s et p.



Notation	Définition
0	Indice s'appliquant au milieu du film.
1	Indice s'appliquant au milieu au dessus du film (air).
2	Indice s'appliquant au milieu en dessous du film (substrat).
(s)	Exposant s'appliquant à la direction de polarisation du champ électrique perpendiculaire au plan d'observation (x, z, $\vec{k}_j$ )
(p)	Exposant s'appliquant à la direction de polarisation du champ électrique dans le plan d'observation (x, z, $\vec{k}_j$ ) et perpendiculaire à $\vec{k}_j$
z-axis	Direction perpendiculaire à la surface du film.
x-axis	Direction à la fois dans le plan de la surface du film et dans le plan contenant le <i>vecteur d'onde</i> $\vec{k}$ .
$\tilde{x}$ -axis	Direction à la fois dans le plan de la surface du film et dans le plan contenant le <i>moment dipolaire</i> $\vec{p}$ .
$\alpha_j$	Angle d'observation dans le milieu j, entre $\vec{k}_j$ et l'axe z.
$\theta$	Angle entre $\vec{p}$ et l'axe z.
$\phi$	Angle entre et l'axe $\tilde{x}$ et l'axe x.
$\beta$	Angle entre $\vec{p}$ et $\vec{k}$
$\psi$	Angle entre $\vec{E}$ et $E^{(p)}$
$\tilde{n}_j$	Indice de réfraction complexe du milieu j.
$n_j$	Partie réelle de l'indice de réfraction du milieu j.
$\kappa_j$	Partie imaginaire de l'indice de réfraction du milieu j.
$\tilde{k}_j$	Vecteur d'onde complexe dans le milieu j.
$\vec{E}$	Champ électrique généré par un dipôle électrique dans un milieu infini.

TABLE A.1 – Définitions des axes, angles, et autres notations utilisées.

$$\begin{aligned}
\vec{u}_p &= \sin \beta \vec{u}_E + \cos \beta \vec{u}_k \\
\vec{E} &= E \left[ \frac{1}{\sin \beta} \vec{u}_p - \frac{\cos \beta}{\sin \beta} \vec{u}_k \right] \\
\vec{E} &= \frac{E}{\sin \beta} \left( \begin{vmatrix} \sin \theta \cdot \cos \phi & \vec{u}_x \\ \sin \theta \cdot \sin \phi & \vec{u}_y \\ \cos \theta & \vec{u}_z \end{vmatrix} - \cos \beta \begin{vmatrix} \sin \alpha & \vec{u}_x \\ 0 & \vec{u}_y \\ \cos \alpha & \vec{u}_z \end{vmatrix} \right) \\
\vec{E} &= \frac{E}{\sin \beta} \begin{vmatrix} \sin \theta \cdot \cos \phi - \sin \alpha \cdot \cos \beta & \vec{u}_x \\ \sin \theta \cdot \sin \phi & \vec{u}_y \\ \cos \theta - \cos \alpha \cdot \cos \beta & \vec{u}_z \end{vmatrix} .
\end{aligned} \tag{A.8}$$

Grâce aux Eqs. A.7 et A.8, on obtient :

$$E^{(s)} = \frac{E}{\sin \beta} \sin \theta \sin \phi \tag{A.9}$$

$$E^{(p)} = \frac{E}{\sin \beta} (\cos \theta \sin \alpha - \sin \theta \cos \phi \cos \alpha) . \tag{A.10}$$

### A.1.2 Intensité énergétique dans un milieu infini

Les équations suivantes montrent comment obtenir l'intensité à partir de l'amplitude du champ électrique. On peut relier le champ électrique à l'irradiance  $Irr$  qui est la puissance incidente du rayonnement électromagnétique sur une surface, par unité de surface.

$$\begin{aligned}
\text{Irradiance spécifique}^1 (W \cdot m^{-2} \cdot nm^{-1}) : \quad Irr &= \langle \vec{\Pi} \rangle = \frac{1}{2} Re(\vec{E} \times \vec{H}^*) \\
Irr &= \frac{n \varepsilon_0 c}{2} \|\vec{E}\|^2 ,
\end{aligned}$$

où  $\varepsilon_0$  est la permittivité du vide,  $c$  est la vitesse de la lumière dans le vide, et  $n$  est l'indice de réfraction du milieu.

L'intensité énergétique (puissance incidente par unité d'angle solide)  $I$  et l'irradiance créée par le dipôle électrique  $\vec{p}$  sont normalisées de manière à ce que :

$$\begin{aligned}
\iint_{4\pi} \left( I_{\vec{p}}^{(s)} + I_{\vec{p}}^{(p)} \right) \cdot d\Omega &= \iint_{4\pi r^2} \left( Irr_{\vec{p}}^{(s)} + Irr_{\vec{p}}^{(p)} \right) \cdot dS = P(\lambda) \\
I_{\vec{p}}^{(s,p)} \cdot d\Omega &= Irr_{\vec{p}}^{(s,p)} \cdot dS = Irr_{\vec{p}}^{(s,p)} \cdot r^2 d\Omega ,
\end{aligned} \tag{A.11}$$

où  $r$  est le rayon de la sphère où l'irradiance est calculée, et  $P(\lambda)$  est la puissance totale<sup>2</sup> émise à la longueur d'onde  $\lambda$  par un seul dipôle  $\vec{p}$ , dans toutes les directions.

$$\begin{aligned}
\text{Intensité énergétique spécifique} (W \cdot sr^{-1} \cdot nm^{-1}) : \quad I_{\vec{p}}^{(s,p)} &= Irr_{\vec{p}}^{(s,p)} \cdot r^2 = r^2 \cdot \frac{n \varepsilon_0 c}{2} \|E^{(s,p)}\|^2 \\
I_{\vec{p}}^{(s,p)} &= F \cdot \frac{\sin^2 \beta}{E^2} \cdot \|E^{(s,p)}\|^2
\end{aligned} \tag{A.12}$$

1. L'adjectif spécifique signifie que la variable s'exprime par unité de longueur d'onde.

2. La contribution des polarisations (s) et (p) sont sommées

$$I_{\vec{p}}^{(s)} = F \sin^2 \theta \sin^2 \phi \quad \text{et} \quad I_{\vec{p}}^{(p)} = F (\cos \theta \sin \alpha - \sin \theta \cos \phi \cos \alpha)^2 \quad .$$

L'équation de normalisation A.11 permet d'obtenir le facteur  $F$  :

$$\begin{aligned} F \int_0^\pi \int_0^{2\pi} (\sin^2 \theta \sin^2 \phi + (\cos \theta \sin \alpha - \sin \theta \cos \phi \cos \alpha)^2) \cdot \sin \alpha \, d\alpha \, d\phi &= P(\lambda) \\ \frac{P(\lambda)}{F} &= \sin^2 \theta \int_0^\pi \sin \alpha \, d\alpha \int_0^{2\pi} \sin^2 \phi \, d\phi + \cos^2 \theta \int_0^\pi \sin^3 \alpha \, d\alpha \int_0^{2\pi} d\phi \\ &\quad + \sin^2 \theta \int_0^\pi \cos^2 \alpha \sin \alpha \, d\alpha \int_0^{2\pi} \cos^2 \phi \, d\phi - 2 \cos \theta \sin \theta \int_0^\pi \sin^2 \alpha \cos \alpha \, d\alpha \int_0^{2\pi} \cos \phi \, d\phi \\ \frac{P(\lambda)}{F} &= \sin^2 \theta \left[ -\cos \alpha \right]_0^\pi \cdot \left[ \frac{\phi}{2} - \frac{\sin 2\phi}{4} \right]_0^{2\pi} + 2\pi \cos^2 \theta \left[ -\cos \alpha + \frac{\cos^3 \alpha}{3} \right]_0^\pi \\ &\quad + \sin^2 \theta \left[ -\frac{\cos^3 \alpha}{3} \right]_0^\pi \cdot \left[ \frac{\phi}{2} + \frac{\sin 2\phi}{4} \right]_0^{2\pi} - 2 \cos \theta \sin \theta \left[ -\frac{\sin^3 \alpha}{3} \right]_0^\pi \cdot \left[ \sin \phi \right]_0^{2\pi} \\ \frac{P(\lambda)}{F} &= 2\pi \sin^2 \theta + \frac{8\pi}{3} \cos^2 \theta + \frac{2\pi}{3} \sin^2 \theta + 0 \\ F &= \frac{3}{8\pi} P(\lambda) = r^2 \cdot \frac{n\varepsilon_0 c}{2} \frac{E^2}{\sin^2 \beta} \quad . \end{aligned}$$

L'intensité énergétique émise par un dipôle électrique  $\vec{p}$ , dans la direction  $\vec{k}$  donnée par les angles  $(\alpha, \phi)$ , s'exprime par l'équation suivante (quelque soit la distance depuis le dipôle source puisque le milieu est infini, homogène et *non absorbant*) :

$$I_{\vec{p}}^{(s)}(\lambda) = \frac{3}{8\pi} P(\lambda) \sin^2 \theta \sin^2 \phi \quad I_{\vec{p}}^{(p)}(\lambda) = \frac{3}{8\pi} P(\lambda) (\cos \theta \sin \alpha - \sin \theta \cos \phi \cos \alpha)^2$$

Considérons maintenant une couche luminescente d'épaisseur  $H$ , et donc un ensemble de dipôles électriques émettant de manière incohérente, et ayant des moments dipolaires  $\vec{p}$  égaux mais orientés aléatoirement. Pour prendre en compte ces orientations aléatoires des dipôles, il faut moyenner  $I_{\vec{p}}^{(s,p)}$  sur les directions de  $\vec{p}$ , c'est-à-dire sur les différents  $\theta$  et  $\phi$ . L'intensité obtenue est appelée  $I_{\langle \vec{p} \rangle}^{(s,p)}$  :

$$\begin{aligned} I_{\langle \vec{p} \rangle}^{(s,p)}(\alpha, \lambda) &= \frac{1}{4\pi} \int_0^\pi \int_0^{2\pi} I_{\vec{p}}^{(s,p)}(\lambda) \sin \theta \, d\theta \, d\phi \\ I_{\langle \vec{p} \rangle}^{(s)}(\alpha, \lambda) = I_{\langle \vec{p} \rangle}^{(p)}(\alpha, \lambda) &= \frac{1}{8\pi} P(\lambda) \quad . \end{aligned}$$

Les dipôles sont situés dans le film d'épaisseur  $H$  ; l'intensité totale émise par cette couche luminescente est donc obtenue en intégrant le produit de  $I_{\langle \vec{p} \rangle}^{(s,p)}$  avec  $L_z(h)$ , la distribution linéique des dipôles émetteurs (s'exprimant en  $m^{-1}$ ), sur les différentes profondeurs dans le

film  $h$ . Puisque la couche est formée par un milieu homogène,  $L_z(h)$  est constante avec  $h$  :

$$\begin{aligned} I^{(s,p)}(\alpha, \lambda) &= \int_0^H I_{\langle \vec{p} \rangle}^{(s,p)}(\alpha, \lambda) \cdot L_z(h) \, dh \\ I^{(s)}(\alpha, \lambda) = I^{(p)}(\alpha, \lambda) &= \frac{L_z}{8\pi} \int_0^H P(\lambda, h) \, dh \\ I(\alpha, \lambda) = I^{(s)}(\alpha, \lambda) + I^{(p)}(\alpha, \lambda) &= \frac{L_z}{4\pi} \int_0^H P(\lambda, h) \, dh \quad . \end{aligned}$$

Etudions maintenant le cas d'un *milieu absorbant*, ayant donc un indice  $\tilde{n}$  complexe. Les équations suivantes montrent les effets de la propagation d'une onde électromagnétique (de vecteur d'onde  $\vec{k}$ ) sur une longueur  $r$  dans ce milieu absorbant

– sur l'amplitude de l'onde  $E$  :

$$\begin{aligned} E' &= E \cdot \exp\left(i\vec{k} \cdot \vec{r}\right) = E \cdot \exp\left(i\frac{2\pi}{\lambda} \tilde{n} r\right) \\ E' &= E \cdot \underbrace{\exp\left(i\frac{2\pi}{\lambda} n r\right)}_{\text{déphasage}} \cdot \underbrace{\exp\left(-\frac{2\pi}{\lambda} \kappa r\right)}_{\text{absorption} = e^{-\tau/2}} \end{aligned}$$

– sur l'intensité de l'onde  $I$  :

$$\begin{aligned} I' &\propto \|E'\|^2 \\ I' &= I \cdot \exp\left(-\frac{4\pi}{\lambda} \kappa \cdot r\right) = I \cdot \exp(-\alpha \cdot r) = I \cdot \exp(-\tau) \end{aligned}$$

où  $\alpha$  est le coefficient d'absorption du milieu (en  $\text{cm}^{-1}$ ) et  $\tau$  est l'épaisseur optique.

## A.2 Effets aux interfaces du film

Dans cette section de l'annexe, les effets dus aux interfaces du film sont introduits et l'amplitude de l'émission dans le milieu 1 est calculée en sommant toutes les composantes transmises, et en prenant en compte le déphasage et l'absorption dus à la propagation de l'onde dans chaque milieu. On obtient ainsi le profil de rayonnement, c'est-à-dire la distribution angulaire de la lumière émise par le film dans le demi-espace 1.

Jusqu'à maintenant, nous avons étudié un milieu infini. Considérons ensuite trois milieux homogènes différents (le milieu 0 est un film entre deux milieux semi-infinis 1 et 2) et leurs interfaces. Le dipôle émetteur  $\vec{p}$  est situé dans le film 0. Le but est de déterminer le rayonnement transmis dans le milieu 1 sous un angle d'observation  $\alpha_1$ .

On distingue deux faisceaux transmis dans le milieu 1 : le faisceau direct D est émis directement vers le milieu 1 (avec un angle d'émission  $\alpha_0$  donné par l'angle d'observation  $\alpha_1$  et la

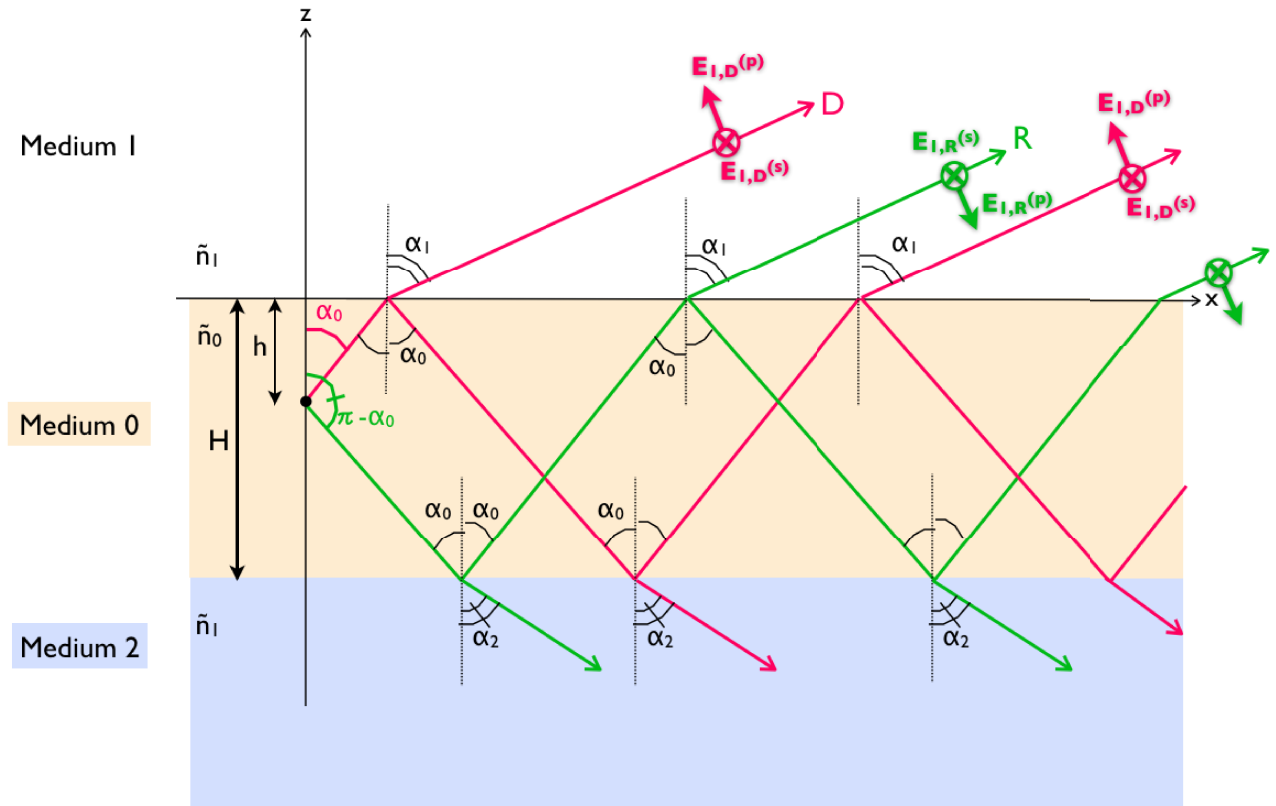


FIGURE A.2 – **Schéma de la géométrie de l'émission par un dipôle dans un film.** Le film est le milieu 0, situé entre les milieux 1 et 2. Le dipôle considéré est à une profondeur  $h$  depuis la surface. L'émission est la combinaison des faisceaux D (rayons rouges) et R (rayons verts).

loi de réfraction de Snell-Descartes). Le faisceau réfléchi R est le faisceau d'abord dirigé vers le milieu 2 et réfléchi à l'interface 0/2 avant d'être transmis dans le milieu 1. Chacun de ces faisceaux est réfléchi de multiples fois aux interfaces du film 0. Des effets d'interférence apparaissent à cause de ces multiples réflexions (*multiple-reflection interference effects*), et aussi à cause de la somme des faisceaux D et R. Les interférences résultant de la somme de ces deux faisceaux sont désignées par *the wide-angle interference effect*.

On considère que le milieu 1 n'est pas absorbant, cela implique que :

$$\kappa_1 = 0 \quad \tilde{n}_1 = n_1$$

### A.2.1 Le faisceau direct D

Étudions ici le faisceau direct D, réfléchi de multiples fois à l'intérieur de la couche 0, puis transmis dans le milieu 1 comme le montre la Fig. A.3 :

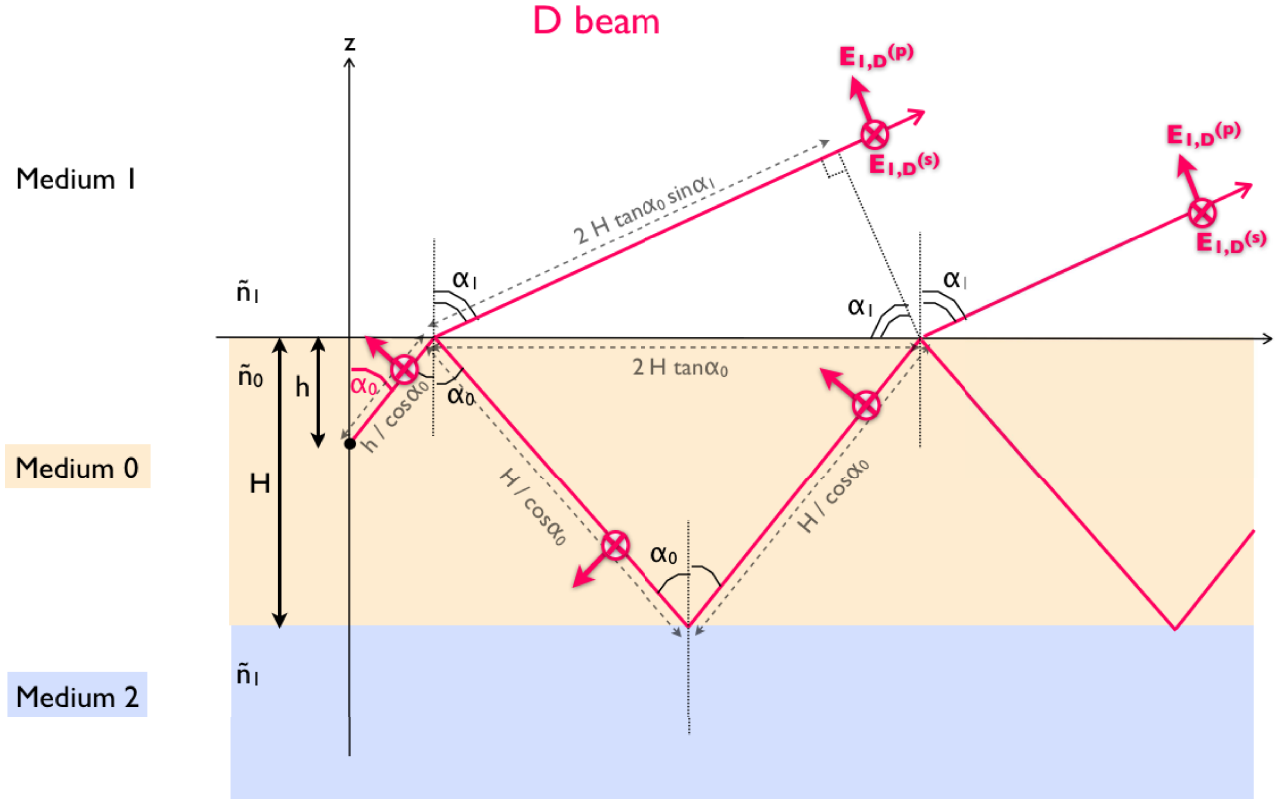


FIGURE A.3 – Schéma de la géométrie de l'émission pour le faisceau direct D.

$$E_D^{(s,p)} = E^{(s,p)}(\alpha = \alpha_0)$$

$$E_{1,D}^{(s,p)} = E_D^{(s,p)} \cdot \exp\left(i \tilde{k}_0 \frac{h}{\cos \alpha_0}\right) \cdot t_{01}^{(s,p)} \cdot \left[ 1 + \left( r_{01}^{(s,p)} r_{02}^{(s,p)} \exp\left(i 2 \tilde{k}_0 \frac{H}{\cos \alpha_0}\right) \cdot \underbrace{\exp\left(-i \tilde{k}_1 2 H \tan \alpha_0 \sin \alpha_1\right)}_{\text{dephasage externe}} \right) + (\dots)^2 + \dots \right]$$

$$E_{1,D}^{(s,p)} = E_D^{(s,p)} \cdot t_{01}^{(s,p)} \cdot \exp(i \delta_0(h)) \cdot \exp(-\tau_0(h)/2) \cdot \left[ 1 + \sum_{l=1}^{\infty} \left( r_{01}^{(s,p)} r_{02}^{(s,p)} \exp(i 2 \delta_0(H)) \exp(-\tau_0(H)) \exp(i \delta_1(H)) \right)^l \right] \quad (\text{A.13})$$

Les notations suivantes sont utilisées pour alléger les expressions.

*Remarque* :  $\tau_0$  est défini avec un facteur  $\frac{1}{2}$  pour obtenir une atténuation de la puissance d'un

facteur  $e^{-\tau_0}$ .

Absorption :

$$\frac{\tau_0(h)}{2} = \frac{2\pi}{\lambda} \kappa_0 \frac{h}{\cos \alpha_0}$$

Déphasage :

$$\delta_0(h) = \frac{2\pi}{\lambda} n_0 \frac{h}{\cos \alpha_0}$$

$$\delta_1(h) = -\frac{2\pi}{\lambda} n_1 2h \tan \alpha_0 \sin \alpha_1 = -\frac{4\pi}{\lambda} n_0 h \frac{\sin^2 \alpha_0}{\cos \alpha_0}$$

$$\delta(h) = 2\delta_0(h) + \delta_1(h) = \frac{4\pi}{\lambda} n_0 h \cos \alpha_0$$

$$r_{ij}^{(s,p)} = \rho_{ij}^{(s,p)} \exp(i \delta_{ij}^{(s,p)}) \quad : \text{coefficient de réflexion de Fresnel}$$

$$\Delta^{(s,p)}(h) = \delta(h) + \delta_{01}^{(s,p)} + \delta_{02}^{(s,p)} = 2\delta_0(h) + \delta_1(h) + \delta_{01}^{(s,p)} + \delta_{02}^{(s,p)},$$

où  $\Delta(H)$  et  $\tau(H)$  sont le déphasage et l'absorption dus seulement à un aller-retour dans la couche 0. On obtient donc :

$$E_{1,D}^{(s,p)} = E_D^{(s,p)} \cdot t_{01}^{(s,p)} \cdot \exp(i \delta_0(h)) \cdot \exp(-\tau_0(h)/2) \cdot m^{(s,p)} \quad (\text{A.14})$$

avec :

$$m^{(s,p)} = \frac{1}{\left[ 1 - \rho_{01}^{(s,p)} \rho_{02}^{(s,p)} \cdot \exp(i \Delta^{(s,p)}(H)) \cdot \exp(-\tau_0(H)) \right]}$$

### A.2.2 Le faisceau réfléchi R

Pour le faisceau réfléchi (Fig. A.4), le facteur dû aux multiples réflexions dans le film reste le même que celui pour le faisceau direct. La référence pour la phase est définie dans le milieu 1 par le faisceau direct :

$$E_R^{(s,p)} = E^{(s,p)}(\alpha = \pi - \alpha_0)$$

$$\begin{aligned} E_{1,R}^{(s,p)} &= E_R^{(s,p)} \exp\left(i \tilde{k}_0 \frac{H-h}{\cos \alpha_0}\right) r_{02}^{(s,p)} \exp\left(i \tilde{k}_0 \frac{H}{\cos \alpha_0}\right) t_{01}^{(s,p)} \exp(-i \tilde{k}_1 2(H-h) \tan \alpha_0 \sin \alpha_1) \\ &\quad \cdot \left[ 1 + \left( r_{01}^{(s,p)} r_{02}^{(s,p)} \exp\left(i 2 \tilde{k}_0 \frac{H}{\cos \alpha_0}\right) \cdot \exp(-i \tilde{k}_1 2H \tan \alpha_0 \sin \alpha_1) \right) + (\dots)^2 + \dots \right] \\ E_{1,R}^{(s,p)} &= E_R^{(s,p)} \cdot t_{01}^{(s,p)} r_{02}^{(s,p)} \cdot \exp[i(\delta_0(H-h) + \delta_0(H) + \delta_1(H-h))] \\ &\quad \cdot \exp\left[-\frac{1}{2}(\tau_0(H-h) + \tau_0(H))\right] \cdot m^{(s,p)} \\ E_{1,R}^{(s,p)} &= E_R^{(s,p)} \cdot t_{01}^{(s,p)} r_{02}^{(s,p)} \cdot e^{i(\delta_0(2H-h) + \delta_1(H-h))} \cdot e^{-\frac{1}{2}(\tau_0(2H-h))} \cdot m^{(s,p)} \quad (\text{A.15}) \end{aligned}$$



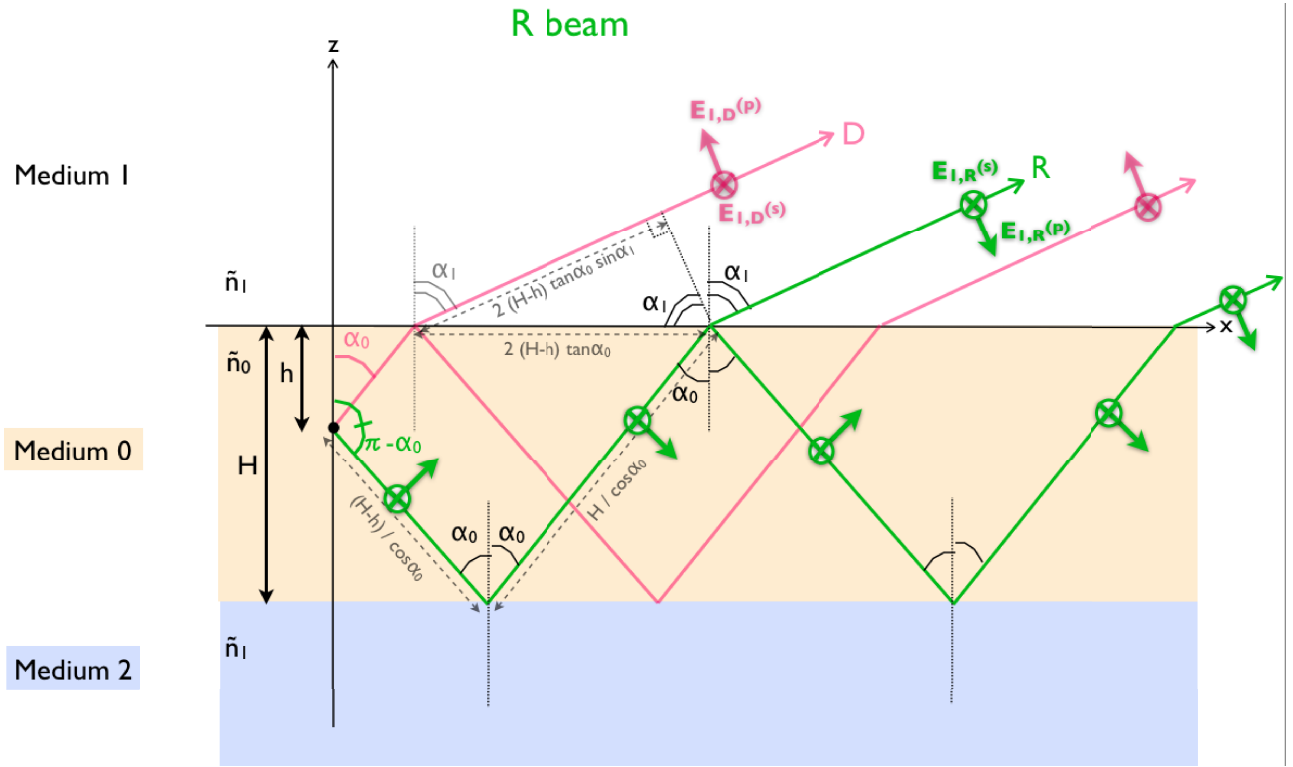


FIGURE A.4 – Schéma de la géométrie de l'émission pour le faisceau réfléchi R.

### A.2.3 Combinaison des faisceaux D et R

Nous avons calculé l'expression de l'amplitude du champ électrique transmis dans le milieu 1 des faisceaux direct  $E_{1,D}^{(s,p)}$  et réfléchi  $E_{1,R}^{(s,p)}$ , pour chaque polarisation, (s) ou (p). Ces amplitudes sont exprimées en fonction de  $E_D^{(s,p)}$  et  $E_R^{(s,p)}$ , qui sont les amplitudes des champs électriques émis par un dipôle dans les directions  $\alpha_D = \alpha_0$  et  $\alpha_R = \pi - \alpha_0$ , respectivement :

$$E_D^{(s,p)} = E^{(s,p)}(\alpha = \alpha_0) \quad \text{et :} \quad E_R^{(s,p)} = E^{(s,p)}(\alpha = \pi - \alpha_0) \quad .$$

Les équations A.9 et A.10 donnent l'influence de l'angle  $\alpha$  sur  $E^{(s,p)}$ . On obtient :

$$E_D^{(s)} = E_R^{(s)} = E^{(s)} = \frac{E}{\sin \beta} \sin \theta \sin \phi \quad (\text{A.16})$$

$$E_D^{(p)} = \frac{E}{\sin \beta} (\cos \theta \sin \alpha_0 - \sin \theta \cos \phi \cos \alpha_0) \quad (\text{A.17})$$

$$E_R^{(p)} = \frac{E}{\sin \beta} (\cos \theta \sin(\pi - \alpha_0) - \sin \theta \cos \phi \cos(\pi - \alpha_0))$$

$$E_R^{(p)} = \frac{E}{\sin \beta} (\cos \theta \sin \alpha_0 + \sin \theta \cos \phi \cos \alpha_0) \quad (\text{A.18})$$

$$\Rightarrow E_R^{(p)} \neq E_D^{(p)} \quad .$$

Pour combiner les champs électriques dans le milieu 1 dus aux faisceaux direct et réfléchi  $\vec{E}_{1,D}^{(s,p)}$  et  $\vec{E}_{1,R}^{(s,p)}$ , il faut faire attention à la direction de ces vecteurs et pas seulement à leur amplitude,

$$\vec{E}_1^{(s,p)} = \vec{E}_{1,D}^{(s,p)} + \vec{E}_{1,R}^{(s,p)} .$$

Considérons la direction des vecteurs  $\vec{E}_D^{(s)}$ ,  $\vec{E}_D^{(p)}$ ,  $\vec{E}_R^{(s)}$  et  $\vec{E}_R^{(p)}$  dans le milieu 0, avant toute réflexion ou transmission aux interfaces du film. Les Eqs. A.3 et A.4 montrent que :

$$\vec{E}_D^{(s)} = \vec{E}_R^{(s)} \quad \text{et} \quad \left| \begin{array}{l} E_{D,x}^{(p)} = -E_{R,x}^{(p)} \\ E_{D,z}^{(p)} = E_{R,z}^{(p)} \end{array} \right. .$$

La réflexion à l'interface 0/2 du faisceau réfléchi change le signe de  $E_{R,z}^{(p)}$ , donc les vecteurs  $\vec{E}_D^{(p)}$  et  $\vec{E}_R^{(p)}$  sont de sens opposés. Comme on peut le voir sur les Figs. A.2, A.3, et A.4, les faisceaux direct et réfléchi transmis dans le milieu 1,  $\vec{E}_{1,D}$  et  $\vec{E}_{1,R}$ , sont

- dans le *même sens* pour la *polarisation s*
- de *sens opposé* pour la *polarisation p*.

L'équation suivante résulte donc de la combinaison de l'amplitude des faisceaux direct et réfléchis :

$$E_1^{(s)} = E_{1,D}^{(s)} + E_{1,R}^{(s)} \quad \text{et} : \quad E_1^{(p)} = E_{1,D}^{(p)} - E_{1,R}^{(p)}$$

$$\begin{aligned} E_1^{(s,p)} &= t_{01}^{(s,p)} \cdot m^{(s,p)} \left[ E_D^{(s,p)} \cdot \exp(\imath \delta_0(h)) \cdot \exp(-\tau_0(h)/2) \right. \\ &\quad \left. \pm_{(p)}^{(s)} E_R^{(s,p)} \cdot r_{02}^{(s,p)} \cdot \exp[\imath (\delta_0(2H-h) + \delta_1(H-h))] \cdot \exp\left[-\frac{1}{2}\tau_0(2H-h)\right] \right] \\ E_1^{(s,p)} &= t_{01}^{(s,p)} m^{(s,p)} \exp(\imath \delta_0(h)) \exp\left(-\frac{\tau_0(h)}{2}\right) \left[ E_D^{(s,p)} \pm E_R^{(s,p)} \rho_{02}^{(s,p)} \exp(\imath \delta_w^{(s,p)}) \exp\left(-\frac{\tau_w}{2}\right) \right] \end{aligned} \quad (9)$$

où  $\delta_w^{(s,p)} = 2 \delta_0(H-h) + \delta_1(H-h) + \delta_{02}^{(s,p)}$  et  $\tau_w = 2 \tau_0(H-h)$  .

### A.2.3.1 Polarisation s

$$\begin{aligned} E_1^{(s)} &= E^{(s)} \cdot \exp(\imath \delta_0(h)) \cdot \exp\left(-\frac{\tau_0(h)}{2}\right) \cdot t_{01}^{(s)} \cdot m^{(s)} \cdot w_+^{(s)} \\ E_1^{(s)} &= \frac{E}{\sin \beta} \sin \theta \sin \phi \cdot \exp(\imath \delta_0(h)) \cdot \exp\left(-\frac{\tau_0(h)}{2}\right) \cdot t_{01}^{(s)} \cdot m^{(s)} \cdot w_+^{(s)} \quad (\text{A.20}) \\ \text{où : } w_+^{(s)} &= \left[ 1 + \rho_{02}^{(s)} \cdot \exp(\imath \delta_w^{(s)}) \cdot \exp\left(-\frac{\tau_w}{2}\right) \right] \end{aligned}$$

### A.2.3.2 Polarisation p

$$\begin{aligned}
 E_1^{(p)} &= \exp(\imath \delta_0(h)) \exp\left(-\frac{\tau_0(h)}{2}\right) t_{01}^{(p)} m^{(p)} \left[ E_D^{(p)} - E_R^{(p)} \cdot \rho_{02}^{(p)} \cdot \exp(\imath \delta_w^{(p)}) \cdot \exp\left(-\frac{\tau_w}{2}\right) \right] \\
 E_1^{(p)} &= \frac{E}{\sin \beta} e^{\imath \delta_0(h)} e^{-\frac{\tau_0(h)}{2}} t_{01}^{(p)} m^{(p)} \left[ \cos \theta \sin \alpha_0 w_-^{(p)} - \sin \theta \cos \phi \cos \alpha_0 w_+^{(p)} \right] \quad (\text{A.21}) \\
 w_+^{(p)} &= \left[ 1 + \rho_{02}^{(p)} \cdot e^{\imath \delta_w^{(p)}} \cdot e^{-\frac{\tau_w}{2}} \right] \quad \text{et} \quad w_-^{(p)} = \left[ 1 - \rho_{02}^{(p)} \cdot e^{\imath \delta_w^{(p)}} \cdot e^{-\frac{\tau_w}{2}} \right].
 \end{aligned}$$

### A.2.4 Profil du rayonnement

Le profil du rayonnement est la distribution angulaire du rayonnement émis par la source  $\vec{p}$  située dans le milieu 0, dans le demi-espace 1, exprimé par  $I_{1,h,\vec{p}(\theta,\phi)}^{(s,p)}(\alpha_0, \phi, \lambda)$  l'intensité ( $W \cdot sr^{-1} \cdot nm^{-1}$ ) émise dans la direction donnée par les angles  $(\alpha_0, \phi)$ .

$$\begin{aligned}
 I_{1,h,\vec{p}(\theta,\phi)}^{(s)}(\alpha_0, \phi, \lambda) &= \frac{3}{8\pi} P(\lambda, h) \sin^2 \theta \sin^2 \phi \cdot \left\| \exp(\imath \delta_0(h)) \cdot \exp\left(-\frac{\tau_0(h)}{2}\right) \cdot t_{01}^{(s)} \cdot m^{(s)} \cdot w_+^{(s)} \right\|^2 \cdot \frac{d\Omega_0}{d\Omega_1} \\
 I_{1,h,\vec{p}(\theta,\phi)}^{(s)}(\alpha_0, \phi, \lambda) &= \frac{3}{8\pi} P(\lambda, h) \sin^2 \theta \sin^2 \phi \cdot e^{-\tau_0(h)} \cdot T_{01}^{(s)} \cdot \|m^{(s)}\|^2 \cdot \|w_+^{(s)}\|^2 \cdot \frac{d\Omega_0}{d\Omega_1} \quad (\text{A.22})
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 I_{1,h,\vec{p}(\theta,\phi)}^{(p)}(\alpha_0, \phi, \lambda) &= \frac{3}{8\pi} P(\lambda, h) e^{-\tau_0(h)} T_{01}^{(p)} \|m^{(p)}\|^2 \frac{d\Omega_0}{d\Omega_1} \left\| \cos \theta \sin \alpha_0 w_-^{(p)} - \sin \theta \cos \phi \cos \alpha_0 w_+^{(p)} \right\|^2 \\
 I_{1,h,\vec{p}(\theta,\phi)}^{(p)}(\alpha_0, \phi, \lambda) &= \frac{3}{8\pi} P(\lambda, h) e^{-\tau_0(h)} T_{01}^{(p)} \|m^{(p)}\|^2 \frac{d\Omega_0}{d\Omega_1} \cdot \left[ \cos^2 \theta \sin^2 \alpha_0 \left\| w_-^{(p)} \right\|^2 \right. \\
 &\quad \left. + \sin^2 \theta \cos^2 \phi \cos^2 \alpha_0 \left\| w_+^{(p)} \right\|^2 - \frac{1}{2} \sin 2\theta \cos \phi \sin 2\alpha_0 w_0^{(p)} \right] \quad (\text{A.23})
 \end{aligned}$$

$$\text{où : } w_0^{(p)} = \Re(w_-^{(p)}) \Re(w_+^{(p)}) + \Im(w_-^{(p)}) \Im(w_+^{(p)}) = 1 - \rho_{02}^{(p)2} \cdot \exp(-\tau_w).$$

#### A.2.4.1 Modification de l'angle solide à l'interface

Le rapport  $\frac{d\Omega_0}{d\Omega_1}$  représente la modification de l'angle solide en passant d'un milieu à un autre.  $I_i d\Omega_i$  est la puissance rayonnée dans le milieu  $i$  dans l'angle solide  $d\Omega_i$ . Lorsque l'onde traverse l'interface  $i/j$ , l'angle solide est modifié et la conservation de la puissance est donnée l'Eq. (A.24) (lorsque le coefficient de transmission vaut 1) :

$$I_i d\Omega_i = I_j d\Omega_j \quad (\text{A.24})$$

C'est l'origine du facteur  $\frac{d\Omega_0}{d\Omega_1}$  dans l'expression de l'intensité  $I_1^{(s,p)}$ . En utilisant la dérivée de la loi de Snell-Descartes, on obtient :

$$\frac{d\Omega_0}{d\Omega_1} = \frac{\sin \alpha_0 d\alpha_0 d\phi}{\sin \alpha_1 d\alpha_1 d\phi} = \frac{n_1^2 \cos \alpha_1}{n_0^2 \cos \alpha_0} \quad (\text{A.25})$$

## A.2.4.2 Orientation aléatoire des dipôles

Pour prendre en compte l'orientation aléatoire des dipôles électriques du film, l'intensité est moyennée sur les différentes valeurs des angles  $\theta$  et  $\phi$ . La géométrie n'est alors plus dépendante de l'angle  $\phi$ ;  $I_1$  dépend uniquement de l'angle d'observation  $\alpha_0$ .  $P(\lambda, h)$ , qui est la puissance totale émise dans toutes les directions de l'espace, à la longueur d'onde  $\lambda$ , par un seul dipôle  $\vec{p}$  à la profondeur  $h$ , ne varie pas avec la direction du dipôle. L'intensité (en  $W \text{ sr}^{-1} \text{ nm}^{-1} \text{ m}^{-1}$ ) émise par une couche d'épaisseur  $dh$  du film, à la profondeur  $h$ , vaut :

$$\begin{aligned}
 I_{1,h}^{(s,p)}(\alpha_0, \lambda) &= \frac{1}{4\pi} \int_0^\pi \int_0^{2\pi} L_z(h) I_{1,h,\vec{p}(\theta,\phi)}^{(s,p)}(\alpha_0, \phi, \lambda) \sin \theta \, d\theta \, d\phi \\
 I_{1,h}^{(s)}(\alpha_0, \lambda) &= \frac{3}{32\pi^2} L_z(h) P(\lambda, h) \cdot e^{-\tau_0(h)} \cdot T_{01}^{(s)} \cdot \|m^{(s)}\|^2 \cdot \|w_+^{(s)}\|^2 \cdot \frac{d\Omega_0}{d\Omega_1} \\
 &\quad \cdot \int_0^\pi \sin^3 \theta \, d\theta \int_0^{2\pi} \sin^2 \phi \, d\phi \\
 I_{1,h}^{(s)}(\alpha_0, \lambda) &= \frac{3}{32\pi^2} L_z(h) P(\lambda, h) e^{-\tau_0(h)} T_{01}^{(s)} \|m^{(s)}\|^2 \|w_+^{(s)}\|^2 \frac{d\Omega_0}{d\Omega_1} \\
 &\quad \cdot \left[ -\cos \theta + \frac{\cos^3 \theta}{3} \right]_0^\pi \left[ \frac{\phi}{2} - \frac{\sin(2\phi)}{4} \right]_0^{2\pi} \\
 I_{1,h}^{(s)}(\alpha_0, \lambda) &= \frac{1}{8\pi} L_z(h) P(\lambda, h) e^{-\tau_0(h)} T_{01}^{(s)} \|m^{(s)}\|^2 \|w_+^{(s)}\|^2 \frac{d\Omega_0}{d\Omega_1} \quad (\text{A.26})
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 I_{1,h}^{(p)}(\alpha_0, \lambda) &= \frac{3}{32\pi^2} L_z(h) P(\lambda, h) e^{-\tau_0(h)} T_{01}^{(p)} \|m^{(p)}\|^2 \frac{d\Omega_0}{d\Omega_1} \cdot \left[ \sin^2 \alpha_0 \|w_-^{(p)}\|^2 \int_0^\pi \cos^2 \theta \sin \theta \, d\theta \int_0^{2\pi} d\phi \right. \\
 &\quad \left. + \cos^2 \alpha_0 \|w_+^{(p)}\|^2 \int_0^\pi \sin^3 \theta \, d\theta \int_0^{2\pi} \cos^2 \phi \, d\phi - \frac{1}{2} \sin 2\alpha_0 w_0^{(p)} \int_0^\pi \sin 2\theta \sin \theta \, d\theta \int_0^{2\pi} \cos \phi \, d\phi \right] \\
 I_{1,h}^{(p)}(\alpha_0, \lambda) &= \frac{3}{32\pi^2} L_z(h) P(\lambda, h) e^{-\tau_0(h)} T_{01}^{(p)} \|m^{(p)}\|^2 \frac{d\Omega_0}{d\Omega_1} \\
 &\quad \cdot \left[ \sin^2 \alpha_0 \|w_-^{(p)}\|^2 \frac{2}{3} 2\pi + \cos^2 \alpha_0 \|w_+^{(p)}\|^2 \frac{4}{3} \pi \right] \\
 I_{1,h}^{(p)}(\alpha_0, \lambda) &= \frac{1}{8\pi} L_z(h) P(\lambda, h) e^{-\tau_0(h)} T_{01}^{(p)} \|m^{(p)}\|^2 \frac{d\Omega_0}{d\Omega_1} \cdot \left[ \sin^2 \alpha_0 \|w_-^{(p)}\|^2 + \cos^2 \alpha_0 \|w_+^{(p)}\|^2 \right] \quad (\text{A.27})
 \end{aligned}$$

Finalement, l'intensité énergétique spécifique dans le milieu 1 et créée par des dipôles élec-

triques d'orientations aléatoires à la profondeur  $h$  du film s'exprime par :

$$I_{1,h}^{(s,p)}(\alpha_0, \lambda) = \frac{1}{8\pi} e^{-\tau_0(h)} T_{01}^{(s,p)} M^{(s,p)} W^{(s,p)} \frac{n_1^2 \cos \alpha_1}{n_0^2 \cos \alpha_0} L_z(h) P(\lambda, h) \quad (\text{A.28})$$

$$\begin{aligned} \text{où : } M^{(s,p)} &= \|m^{(s,p)}\|^2 = \left\| 1 - \rho_{01}^{(s,p)} \rho_{02}^{(s,p)} \cdot \exp(i \Delta^{(s,p)}(H)) \cdot \exp(-\tau_0(H)) \right\|^2 \\ &= 1 + \rho_{01}^{(s,p)2} \rho_{02}^{(s,p)2} \cdot e^{-2\tau_0(H)} - 2 \rho_{01}^{(s,p)} \rho_{02}^{(s,p)} \cdot e^{-\tau_0(H)} \cos(\Delta^{(s,p)}(H)) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{et : } W^{(s)} &= \|w_+^{(s)}\|^2 = \left\| 1 + \rho_{02}^{(s,p)} \cdot \exp(i \delta_w^{(s)}) \cdot \exp(-\frac{\tau_w}{2}) \right\|^2 \\ &= 1 + \rho_{02}^{(s,p)2} \cdot e^{-\tau_w} + 2 \rho_{02}^{(s,p)} \cdot e^{-\tau_w/2} \cos(\delta_w^{(s)}) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} W^{(p)} &= \sin^2 \alpha_0 \|w_-^{(p)}\|^2 + \cos^2 \alpha_0 \|w_+^{(p)}\|^2 \\ &= 1 + \rho_{02}^{(s,p)2} e^{-\tau_w} + 2 \rho_{02}^{(s,p)} e^{-\tau_w/2} \cos(\delta_w^{(p)}) \cos(2\alpha_0) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{Rappelons que : } \Delta^{(s,p)}(h) &= 2\delta_0(h) + \delta_1(h) + \delta_{01}^{(s,p)} + \delta_{02}^{(s,p)} = \frac{4\pi}{\lambda} n_0 h \cos \alpha_0 + \delta_{01}^{(s,p)} + \delta_{02}^{(s,p)} \\ \delta_w^{(s,p)} &= 2\delta_0(H-h) + \delta_1(H-h) + \delta_{02}^{(s,p)} = \frac{4\pi}{\lambda} n_0 (H-h) \cos \alpha_0 + \delta_{02}^{(s,p)} \\ \tau_w &= 2\tau_0(H-h) = \frac{8\pi}{\lambda} \kappa_0 \frac{H-h}{\cos \alpha_0} \end{aligned}$$

où  $\|t_{01}^{(s,p)}\|^2$ ,  $\rho_{ij}^{(s,p)}$  et  $\delta_{ij}^{(s,p)}$  sont exprimés dans la section suivante. La variable  $M^{(s,p)}$  représente l'influence des *multiple-beam interferences*, et  $W^{(s,p)}$  est dû aux *wide angle interferences*.

#### A.2.4.3 Intensité énergétique observée dans le milieu 1

Jusqu'à maintenant, nous n'avons pas abordé la dépendance de l'émission avec la longueur d'onde. L'intensité observée dépend de  $\lambda$  au travers de  $P(\lambda, h)$  la puissance rayonnée par chaque dipôle, qui varie avec la longueur d'onde suivant un profil d'émission  $Em(\lambda)$  (en  $nm^{-1}$ ) propre au matériau étudié. Dans le cas de photoluminescence, l'émission de chaque dipôle résulte aussi de l'excitation absorbée ( $Abs(h)$  est la puissance absorbée par unité de longueur ( $W \cdot m^{-1}$ )) qui dépend de la profondeur  $h$ . L'émission dépend aussi du rendement de photoluminescence  $\eta_E$ <sup>3</sup>.

La puissance spécifique émise par unité de longueur du film ( $W \cdot nm^{-1} \cdot m^{-1}$ ) est :

$$L_z(h) P(\lambda, h) = Abs(h) \eta_E Em(\lambda) \quad . \quad (\text{A.29})$$

---

3. Le rendement de photoluminescence est ici un rapport d'énergies (ou de puissances), différent du rendement quantique qui est un rapport de nombres de photons.

La puissance totale ( $W$ ) émise par le film dans la gamme de longueurs d'ondes comprises entre  $\lambda_{min}$  et  $\lambda_{max}$ , et dans toutes les directions, s'exprime par :

$$P_{tot} = \int_{\lambda_{min}}^{\lambda_{max}} \int_0^H L_z(h) P(\lambda, h) dh d\lambda \quad (\text{A.30})$$

$$P_{tot} = \eta_E \int_0^H Abs(h) dh \int_{\lambda_{min}}^{\lambda_{max}} Em(\lambda) d\lambda \quad . \quad (\text{A.31})$$

De plus, puisque l'ensemble du film émet, il faut tenir compte de tous les dipôles électriques  $\vec{p}$  situés aux profondeurs  $h$  comprises entre 0 et  $H$  (avec une distribution homogène des dipôles sur cet intervalle). Pour obtenir l'intensité énergétique spécifique observée dans le milieu 1, il faut donc intégrer l'expression donnée par l'Eq. A.28 sur l'intervalle  $[0, H]$  :

$$I_1^{(s,p)}(\alpha_0, \lambda) = \int_0^H I_{1,h}^{(s,p)}(\alpha_0, \lambda) dh \quad (\text{A.32})$$

$$I_1(\alpha_0, \lambda) = I_1^{(s)}(\alpha_0, \lambda) + I_1^{(p)}(\alpha_0, \lambda) \quad . \quad (\text{A.33})$$

La puissance totale reçue entre  $\lambda_{min}$  et  $\lambda_{max}$ , sur un détecteur  $D$  qui "voit" un angle solide  $\Omega_D$  vaut :

$$P_{1,D}(\alpha_0) = \int_{\Omega_D} \int_{\lambda_{min}}^{\lambda_{max}} I_1(\alpha_0, \lambda) d\lambda d\Omega \quad . \quad (\text{A.34})$$

## A.3 Coefficients de Fresnel

Dans cette section, les coefficients de Fresnel seront exprimés pour un milieu absorbant (c'est-à-dire avec un indice de réfraction complexe).

### A.3.1 Réflexion

Les coefficients de Fresnel pour la réflexion sont donnés par les équations :

$$r_{ij}^{(s)} = \frac{\tilde{n}_i \cos \alpha_i - \tilde{n}_j \cos \alpha_j}{\tilde{n}_i \cos \alpha_i + \tilde{n}_j \cos \alpha_j} \quad r_{ij}^{(p)} = \frac{\tilde{n}_i \cos \alpha_j - \tilde{n}_j \cos \alpha_i}{\tilde{n}_i \cos \alpha_j + \tilde{n}_j \cos \alpha_i} \quad . \quad (\text{A.35})$$

Les angles  $\alpha_{i,j}$  sont des angles complexes donnés par la loi de réfraction de Snell-Descartes pour un milieu absorbant, c'est-à-dire avec des indices complexes [Kovalenko 2001] :

$$\tilde{n}_i \sin \alpha_i = \tilde{n}_j \sin \alpha_j \quad . \quad (\text{A.36})$$

Les variables  $\rho_{ij}^{(s,p)}$  et  $\delta_{ij}^{(s,p)}$  sont définies par  $r_{ij}^{(s,p)} = \rho_{ij}^{(s,p)} \cdot e^{i \delta_{ij}^{(s,p)}}$ .

### A.3.2 Transmission

Les coefficients de Fresnel pour la transmission (rapport des amplitudes de l'onde) sont donnés par les équations :

$$t_{ij}^{(s,p)} = \frac{E_j^{(s,p)}}{E_i^{(s,p)}} \quad (\text{A.37})$$

$$t_{ij}^{(s)} = \frac{2\tilde{n}_i \cos \alpha_i}{\tilde{n}_i \cos \alpha_i + \tilde{n}_j \cos \alpha_j} \quad t_{ij}^{(p)} = \frac{2\tilde{n}_i \cos \alpha_i}{\tilde{n}_i \cos \alpha_j + \tilde{n}_j \cos \alpha_i} \quad . \quad (\text{A.38})$$

Les transmittances de Fresnel (rapport de puissances) sont obtenues par les équations :

$$T_{ij}^{(s,p)} = \frac{P_j^{(s,p)}}{P_i^{(s,p)}} = \frac{Irr_j^{(s,p)} A_j}{Irr_i^{(s,p)} A_i} \quad , \quad (\text{A.39})$$

où  $A_{i,j}$  est la section surfacique du faisceau dans le milieu i ou j, alors que  $P_{i,j}$  et  $Irr_{i,j}$  sont les puissances (en Watt) et l'irradiance (en  $\text{W.m}^{-2}$ ) incidentes et transmises :

$$T_{ij}^{(s,p)} = \frac{Irr_j^{(s,p)} \cos \alpha_j}{Irr_i^{(s,p)} \cos \alpha_i} \quad (\text{A.40})$$

$$T_{ij}^{(s,p)} = \frac{n_j \cos \alpha_j}{n_i \cos \alpha_i} \|t_{ij}^{(s,p)}\|^2 \quad . \quad (\text{A.41})$$

*Remarque :* De la même façon, la réflectance est définie par  $R_{ij}^{(s,p)} = \frac{P_{i,reflected}^{(s,p)}}{P_i^{(s,p)}} = \|r_{ij}^{(s,p)}\|^2$

$$R_{ij}^{(s,p)} + T_{ij}^{(s,p)} = 1 \quad . \quad (\text{A.42})$$

On peut aussi définir un autre facteur de transmission  $\hat{T}_{ij}$  qui prend en compte la modification de l'angle solide due à la réfraction à l'interface entre les milieux i et j :

$$\hat{T}_{ij}^{(s,p)} = T_{ij}^{(s,p)} \frac{d\Omega_i}{d\Omega_j} \quad (\text{A.43})$$

$$\hat{T}_{ij}^{(s,p)} = T_{ij}^{(s,p)} \frac{n_j^2 \cos \alpha_j}{n_i^2 \cos \alpha_i} \quad (\text{A.44})$$

$$\hat{T}_{ij}^{(s,p)} = \|t_{ij}^{(s,p)}\|^2 \frac{n_j^3 \cos^2 \alpha_j}{n_i^3 \cos^2 \alpha_i} \quad . \quad (\text{A.45})$$



# Utilisation d'une sphère intégrante

---

## B.1 Principe de la mesure

La sphère intégrante que nous utilisons est une cavité sphérique de quelques centimètres de diamètre, avec quelques ouvertures, et dont les parois sont recouverte de Spectralon (diffuseur lambertien) dont la réflectance est connue et supérieure à 99%. Les ouvertures serviront à faire entrer le rayonnement d'excitation, collecter la photoluminescence émise, placer l'échantillon dans la sphère ou bien seront fermées avec des bouchons de Spectralon. Deux fibres optiques relie la sphère au fluorimètre afin d'utiliser les blocs d'excitation et de détection de ce dernier.

L'intérêt d'une sphère intégrante est sa capacité à collecter toute la lumière émise dans la sphère, quelque soit les directions de l'émission et la géométrie de l'échantillon. Par contre, les parois de la sphère diffuse de multiples fois la PL et une partie de l'émission peut être absorbée par l'échantillon. Cet effet aurait pu être important pour le calcul du rendement de photoluminescence, mais pour le BGO, le recouvrement entre la bande d'émission et la bande d'absorption peut être considéré comme nul.

L'échantillon est placé sur la paroi de la sphère (sur un bouchon de Spectralon), face au faisceau d'excitation quasi-monochromatique (dont l'étendue est plus petite que la surface de l'échantillon). Une partie de l'excitation est absorbée par l'échantillon qui émet ensuite de la photoluminescence dans toutes les directions. Cette PL et l'excitation qui n'a pas été absorbée directement par l'échantillon sont réfléchies de multiples fois sur les parois de la sphère. La fibre optique de sortie, connectée au bloc de détection du fluorimètre, récolte ainsi la PL et l'excitation qui n'a pas été absorbée. L'excitation diffusée dans la sphère peut en parallèle être absorbée par l'échantillon et donner lieu à de l'émission secondaire qui devra être prise en compte.

Pour calculer le rendement de PL de l'échantillon avec la sphère intégrante, trois mesures différentes sont nécessaires (Fig. B.1). Une première mesure est effectuée sans l'échantillon et permet d'évaluer l'excitation incidente. Le pic d'excitation détecté et intégré sur les longueurs d'onde est noté  $L_1$ . La deuxième mesure est celle où l'on place l'échantillon en face du faisceau d'excitation. On désigne par  $L_2$  l'aire du pic détecté aux longueurs d'onde d'excitation, et par  $P_2$  celle de la bande de PL. Pour finir, on mesure le spectre du rayonnement issu de la sphère lorsque l'on place l'échantillon sur la paroi de manière à ce que l'excitation ne soit pas directement incidente sur ce dernier.  $L_3$  et  $P_3$  désignent les bandes d'excitation et d'émission détectée lors de cette troisième mesure. L'excitation non absorbée est plus importante lorsque l'échantillon ne l'intercepte pas directement ( $L_3 > L_2$ ), et la photoluminescence est alors plus faible ( $P_3 < P_2$ ).

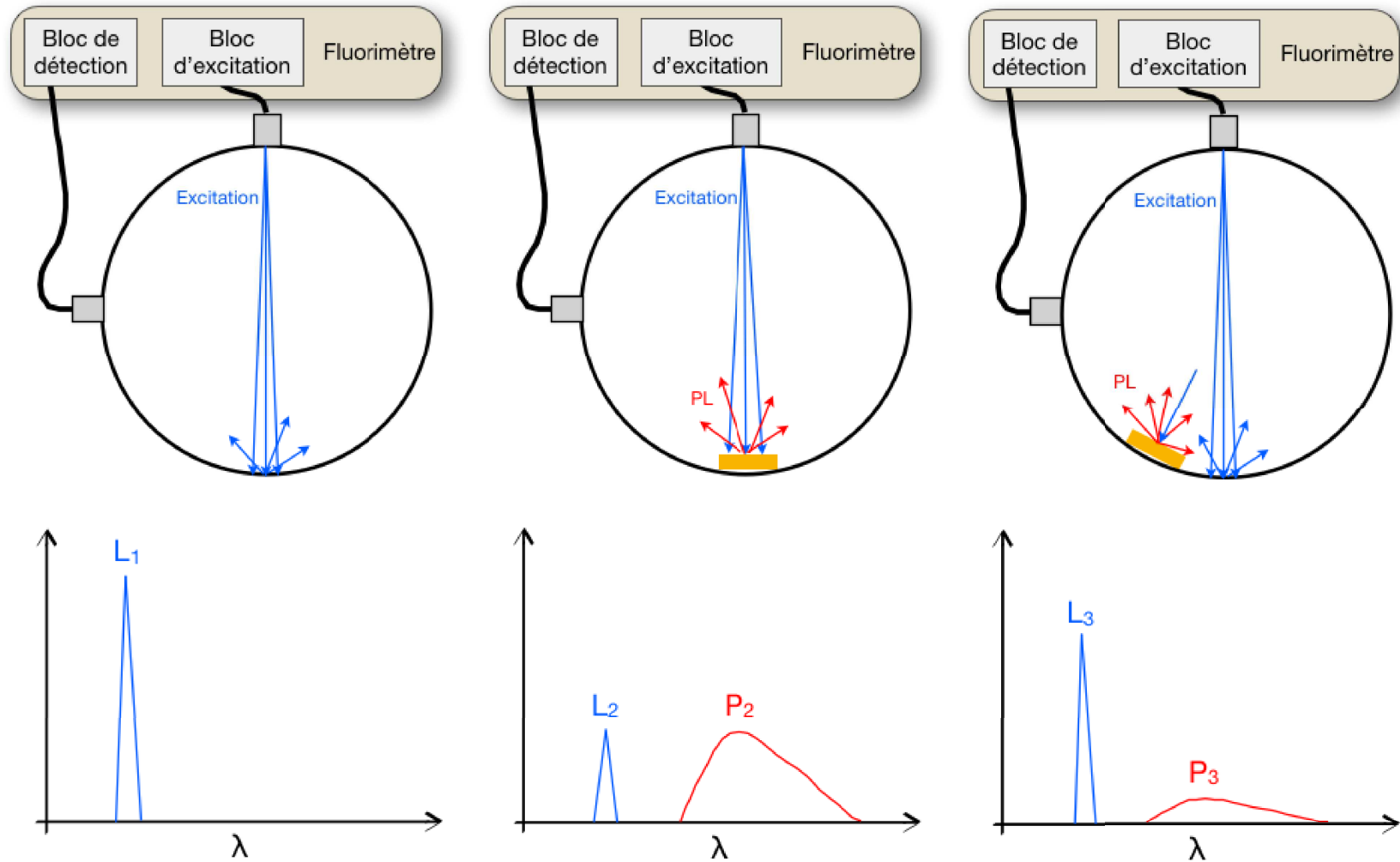


FIGURE B.1 – Principe des mesures pour calculer le rendement de photoluminescence avec une sphère **intégrante**. Trois mesures sont nécessaires : une sans l'échantillon, une avec l'échantillon en face du faisceau d'excitation, et une dernière mesure avec l'échantillon de telle manière à ce qu'il ne reçoive pas l'excitation directement, seulement après diffusion par la sphère. Les spectres mesurés dans chaque cas sont représentés schématiquement en bas.

## B.2 Calcul du rendement de PL avec une sphère intégrante

Notons  $\mu$  la fraction de l'excitation diffusée par la sphère et absorbée par l'échantillon dans la troisième expérience. La quantité  $L_3$  mesure l'excitation incidente sur la sphère qui n'a pas été absorbée par l'échantillon et s'exprime donc par :

$$L_3 = L_1 \cdot (1 - \mu) \quad (\text{B.1})$$

Si l'on appelle  $A$  la fraction d'excitation directement absorbée par l'échantillon dans la deuxième expérience, alors la quantité  $L_2$  qui désigne l'excitation qui n'a pas été absorbée par l'échantillon (ni directement, ni par les absorptions secondaires) peut s'écrire :

$$L_2 = L_1 \cdot (1 - A) \cdot (1 - \mu) = L_3 \cdot (1 - A) \quad (\text{B.2})$$

On obtient donc :

$$A = 1 - \frac{L_2}{L_3} \quad (\text{B.3})$$

La photoluminescence détectée lors de la troisième expérience est la somme de la PL émise directement lorsque l'excitation collimatée sur l'échantillon a été absorbée, et de la PL secondaire résultant des absorptions de l'excitation diffusée par la sphère. Puisque cette PL secondaire est équivalente à celle mesurée lors de la troisième mesure, mais avec une excitation plus faible d'un facteur  $1 - A$  (ce qui n'a pas été absorbé lors de l'incidence directe de l'excitation sur l'échantillon), on peut écrire :

$$P_2 = L_1 \cdot A \cdot \eta + P_3 \cdot (1 - A) \quad (\text{B.4})$$

Et donc, le rendement de PL de l'échantillon s'obtient par :

$$\eta = \frac{P_2 - P_3 \cdot (1 - A)}{L_1 \cdot A} \quad (\text{B.5})$$



# Résultats des irradiations avec un ajustement par une fonction exponentielle

---

## C.1 Ajustement par une fonction exponentielle

Dans le chapitre 8, la diminution de la profondeur optique des modes de vibration des liaisons C-H aliphatiques a été ajustée par une fonction résultant du modèle de recombinaison (Eq. 8.1). La décroissance de la concentration en hydrogène peut être alternativement ajustée en faisant l'hypothèse de processus cinétiques du premier ordre [Mennella *et al.* 2003, Pawlak *et al.* 1997], avec une fonction exponentielle à laquelle une constante représentant la quantité résiduelle d'hydrogène est ajoutée. Cette équation est :

$$\rho = \rho_f + (\rho_i - \rho_f) \exp(-\sigma_d F_I). \quad (\text{C.1})$$

L'évolution de la densité d'hydrogène en fonction de la fluence est donnée par :

$$\frac{d\rho}{dF_I} = -\sigma_d \rho \left(1 - \frac{\rho_f}{\rho}\right). \quad (\text{C.2})$$

Les incertitudes sur la section efficace  $\sigma_d$  déterminées par l'équation 8.2 sont plus importantes que celles déterminées par l'équation C.1, à cause du fait que  $\sigma_d$  soit plus dépendant de la valeur de  $\rho_f$  pour l'équation 8.2 que pour l'équation C.1. Pour réduire ces incertitudes, il serait nécessaire de déterminer plus précisément le comportement asymptotique à haute fluence, et donc d'irradier avec de trop forts flux (beaucoup plus élevés que les flux interstellaires, et qui pourraient induire un chauffage des échantillons) ou bien d'irradier pendant des temps trop longs.

## C.2 Paramètres de la destruction déterminés par l'ajustement exponentiel

Les sections efficaces de destruction  $\sigma_d$ , les contenus relatifs en hydrogène asymptotiques  $A_f/A_i$ , et les volumes  $1/\rho_f$  correspondants, sont reportés dans le Tableau C.1 pour les différentes expériences ajustées par la fonction exponentielle. Les valeurs de  $\sigma_d$  sont tracées en fonction de  $S_e$  sur la Fig. C.1, pour les a-C:H et les suies. Comme pour les résultats obtenus avec le modèle de recombinaison,  $\sigma_d$  augmente avec  $S_e$  comme une loi de puissance, et cette corrélation peut

être ajustée par l'Eq. 8.5. Les valeurs correspondantes de  $\alpha$  et de  $K$  sont données dans le tableau C.2, pour les a-C:H et les suies. Les valeurs de  $\sigma_d$  obtenues avec l'ajustement exponentiel sont légèrement plus élevée que celles obtenues avec le modèle de recombinaison, mais les valeurs possibles de  $\alpha$  déterminées avec l'ajustement exponentiel sont en accord avec celles obtenues par le modèle de recombinaison.

Echantillon	Ion	$E$ (MeV)	$S_e$ (MeV/(mg/cm <sup>2</sup> ))	$\sigma_d$ (cm <sup>2</sup> )	$A_f/A_i$	$1/\rho_f$ (Å <sup>3</sup> )
a-C:H 1	H <sup>+</sup>	10	4.580 10 <sup>-2</sup>	(0.05)1.9(3.5) 10 <sup>-16</sup>	—	—
a-C:H 1	H <sup>+</sup>	10	4.580 10 <sup>-2</sup>	(0.7)3.2(7.0) 10 <sup>-17</sup>	(0.00)0.72(0.83)	> 21
a-C:H 1	He <sup>2+</sup>	20	3.207 10 <sup>-1</sup>	(0.4)3.8(5.3) 10 <sup>-15</sup>	—	—
a-C:H 1	H <sup>+</sup>	0.2	7.092 10 <sup>-1</sup>	(0.8)2.6(5.5) 10 <sup>-16</sup>	(0.26)0.56(0.64)	(28)32(69)
a-C:H 1	C <sup>6+</sup>	91	2.07	(3.7)9.4(17) 10 <sup>-16</sup>	(0.29)0.45(0.50)	(35)40(61)
a-C:H 1	C <sup>5+</sup>	50	3.274	(1.5)3.4(6.1) 10 <sup>-15</sup>	(0.42)0.52(0.56)	(32)34(42)
a-C:H 1	Si <sup>7+</sup>	85	15.91	(1.6)3.6(5.7) 10 <sup>-14</sup>	(0.21)0.30(0.31)	(58)59(82)
a-C:H 1	Ni <sup>9+</sup>	100	46.98	(1.2)2.1(2.9) 10 <sup>-13</sup>	<0.45	> 40
a-C:H 1	I <sup>12+</sup>	160	89.33	(2.6)4.6(7.2) 10 <sup>-13</sup>	(0.24)0.31(0.36)	(50)57(72)
a-C:H 2	He <sup>2+</sup>	20	3.207 10 <sup>-1</sup>	< 1.0 10 <sup>-15</sup>	—	—
a-C:H 2	C <sup>6+</sup>	91	2.07	(1.0)1.9(3.1) 10 <sup>-15</sup>	(0.56)0.63(0.68)	(26)28(32)
a-C:H 2	I <sup>12+</sup>	160	89.33	(1.3)6.1(18) 10 <sup>-13</sup>	(0.00)0.54(0.71)	> 25
Suie	H <sup>+</sup>	10	4.109 10 <sup>-2</sup>	(0.2)2.8(7.2) 10 <sup>-16</sup>	(0.00)0.65(0.67)	> 26
Suie	C <sup>5+</sup>	50	2.864	(0.9)8.3(19) 10 <sup>-15</sup>	(0.00)0.64(0.68)	> 26
Suie	Si <sup>7+</sup>	85	13.7	(1.6)4.2(6.8) 10 <sup>-14</sup>	(0.16)0.31(0.33)	> 55
Suie	Ni <sup>9+</sup>	100	39.35	(0.9)1.9(3.3) 10 <sup>-13</sup>	(0.31)0.39(0.40)	> 45

TABLE C.1 – **Paramètres de la destruction de la bande à 3.4  $\mu$ m par les irradiations, obtenus grâce à l'ajustement exponentiel.** Les valeurs de la section efficace de destruction des C-H aliphatiques  $\sigma_d$ , de l'asymptote de la profondeur optique intégrée relative  $A_f/A_i$ , et de  $1/\rho_f$  sont reportées dans ce tableau (voir le texte pour plus de détails). Les valeurs extrêmes de chacun de ces paramètres sont données entre parenthèses.

Matériau	$\alpha$	$K$
a-C:H	1.3(±0.3)	1.0(±0.4)10 <sup>-15</sup>
Suie	1.0(±0.3)	4.0(±2.3)10 <sup>-15</sup>

TABLE C.2 – **Valeurs des paramètres d'ajustement de  $\sigma_d$  (Eq. 8.5).**  $K$  est donné en cm<sup>2-2 $\alpha$</sup> MeV<sup>- $\alpha$</sup> mg <sup>$\alpha$</sup> . Les valeurs de  $\sigma_d$  sont obtenues par l'ajustement exponentiel.

Sur la Fig. C.1 sont aussi représentées les valeurs de  $\sigma_d$  obtenues avec l'ajustement exponentiel de données trouvées dans la littérature concernant les a-C:H ([Prawer *et al.* 1987], [Baumann *et al.* 1987], [Fujimoto *et al.* 1988], [Ingram & McCormick 1988], [Zou *et al.* 1988], [González-Hernández *et al.* 1988], [Adel *et al.* 1989], [Marée *et al.* 1996], [Pawlak *et al.* 1997], [Som *et al.* 1999], [Mennella *et al.* 2003], [Baptista *et al.* 2004], [Som *et al.* 2005]). Dans l'article de [Pawlak *et al.* 1997], de nombreuses valeurs de  $\sigma_d$  ont été calculées avec des ajustements exponentiels, mais les données de la diminution du contenu en hydrogène en fonction de

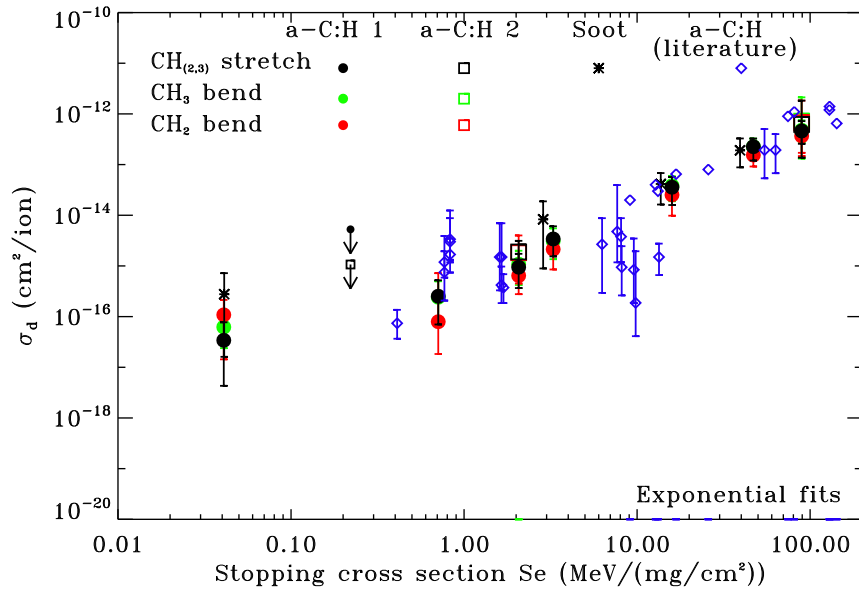


FIGURE C.1 – Sections efficaces de destruction  $\sigma_d$  des C-H aliphatiques, obtenues avec l'ajustement exponentiel, en fonction du pouvoir d'arrêt électronique  $S_e$ . Les a-C:H 1 sont représentés par des points, les a-C:H 2 par des carrés, et les suies par des croix noires. Les valeurs de  $\sigma_d$  calculées, avec les ajustements par des fonctions exponentielles, à partir des données expérimentales de différentes expériences d'irradiation d'a-C:H sont représentées par les losanges bleus [Adel *et al.* 1989, Baptista *et al.* 2004, Baumann *et al.* 1987, Fujimoto *et al.* 1988, González-Hernández *et al.* 1988, Ingram & McCormick 1988, Marée *et al.* 1996, Mennella *et al.* 2003, Pawlak *et al.* 1997, Prawer *et al.* 1987, Som *et al.* 2005, Som *et al.* 1999, Zou *et al.* 1988].

la fluence ne sont pas disponibles pour la plupart des expériences. Les valeurs correspondantes apparaissent donc sans barre d'erreur sur la Fig. C.1. Comme sur la Fig. 8.9, les expériences pour lesquelles  $S_n/S_e > 0.5$  ou  $d/R_p > 0.9$  ne sont pas représentées.





## The deep 3.4 $\mu\text{m}$ interstellar absorption feature toward the IRAS 18511+0146 cluster

*Astronomy & Astrophysics*, accepted

Marie Godard<sup>a</sup>, Thomas R. Geballe<sup>b</sup>, Emmanuel Dartois<sup>a</sup>, Guillermo M. Muñoz Caro<sup>c</sup>

<sup>a</sup> Institut d'Astrophysique Spatiale; Univ Paris-Sud, bât. 121, F-91405 Orsay, France

<sup>b</sup> Gemini Observatory, 670 N. A'ohoku Place, Hilo, HI 96720, USA

<sup>c</sup> Centro de Astrobiología (CSIC-INTA), Ctra. de Ajalvir, km 4, Torrejón de Ardoz, 28850 Madrid, Spain

Received 6 May 2011 / Accepted 17 October 2011

### Abstract

*Context.* An absorption feature at 3.4  $\mu\text{m}$ , widely observed in the diffuse interstellar medium, is produced by aliphatic hydrocarbon dust. In the local interstellar medium there is in general a linear correlation between the 3.4  $\mu\text{m}$  optical depth and the visual extinction  $A_V$ . However, the 3.4  $\mu\text{m}$  optical depth toward the young stellar object IRAS 18511+0146, the highest found in the local diffuse ISM apart from the Galactic centre lines of sight, is three times higher than predicted from the most likely value for the distance of the object, the extinction-distance relation for the Galactic diffuse ISM, and the value of  $A_V/\tau_{3.4}$  in the Galactic disk.

*Aims.* IRAS 18511+0146 is associated with a small cluster of stars. We have obtained spectra of it as well as two other cluster members in order to verify the unusually high 3.4  $\mu\text{m}$  optical depth toward IRAS 18511+0146 and test for patchiness in the foreground diffuse cloud material.

*Methods.* Spectra covering 2.9 - 4.1  $\mu\text{m}$  were recorded using the near-infrared imager/spectrograph (NIRI) at the Gemini North telescope.

*Results.* After subtraction of the superimposed 3.47  $\mu\text{m}$  band, produced in dense interstellar gas associated with the cluster, we have determined optical depths of 0.06-0.08 for the 3.4  $\mu\text{m}$  absorption on the three lines of sight. We discuss the distance and extinction to the IRAS 18511+0146 cluster and possible interpretations of the high optical depth of the 3.4  $\mu\text{m}$  absorption.

*Conclusions.* The most probable distance to the IRAS 18511+0146 cluster is 3.9 kpc. Two different interpretations of the high observed  $\tau_{3.4}$  are then possible. (i) The  $A_V$  to distance ratio toward the cluster is approximately the one observed on average in the Galactic diffuse ISM, in which case  $A_V \sim 7$  and  $\tau_{3.4}$  in this direction is three times higher than predicted by the usual  $A_V/\tau_{3.4}$  observed in local diffuse ISM. (ii) The visual extinction in the direction of the IRAS 18511+0146 cluster is higher (i.e. 15-20 mag), probably due to a diffuse cloud associated with the cluster, resulting in a high value of  $\tau_{3.4}$ . In either case, the high  $\tau_{3.4}$  makes this cluster a unique and valuable line of sight for studying the Galactic hydrocarbon dust.

**Key words.** Dust, extinction – ISM : lines and bands – infrared : ISM – methods : observational – techniques : spectroscopic – stars : individual : IRAS 18511+0146

# Photoluminescence of hydrogenated amorphous carbons

## Wavelength-dependent yield and implications for the extended red emission

*Astronomy & Astrophysics*, **519**, A39 (2010)

Marie Godard, Emmanuel Dartois

Institut d'Astrophysique Spatiale (IAS, UMR8617) ; Univ Paris-Sud, bât. 121, F-91405 Orsay, France

Received 18 December 2009 / Accepted 11 March 2010

### Abstract

*Context.* Hydrogenated amorphous carbons (a-C:H or HAC) have proved to be excellent analogs of interstellar dust observed in galaxies diffuse interstellar medium (DISM) through infrared vibrational absorption bands (3.4  $\mu\text{m}$ , 6.8  $\mu\text{m}$ , and 7.2  $\mu\text{m}$  bands). They exhibit photoluminescence (PL) after excitation by UV-visible photons, and are possible carriers for the extended red emission (ERE), a broad red emission band observed in various interstellar environments.

*Aims.* As many candidate materials/molecules can photoluminesce in the visible, along with the carrier abundance, the PL efficiency represents one of the strongest constraints set by such ERE observations. We wish to precisely characterize the PL behavior of a-C:H as a family of materials.

*Methods.* The a-C:H samples are produced in the form of films deposited on substrates by plasma-enhanced chemical vapor deposition. The produced films were analyzed in transmission by UV-visible and IR spectroscopy, and the wavelength dependent PL spectra were recorded. The intrinsic absolute quantum yield  $\eta$  was then rigorously calculated taking self-absorption of the PL by the film and interfaces effects into account.

*Results.* A wide range of different laboratory synthesized a-C:H were analyzed. Their PL properties are dependent on the optical gap  $E_{04}$  : when  $E_{04}$  decreases from 4.3 eV to 2.8 eV, the a-C:H vary from highly ( $\eta \sim 1\%$ ) yellow photoluminescent soft materials to hard materials that emit a wider PL band in the red spectral range, with a lower efficiency ( $\eta \sim 0.01 - 0.1\%$ ). For any given a-C:H, the PL characteristics (central wavelength, band width and efficiency) are found to be essentially constant over the explored excitation range ( $\lambda_{exc} \gtrsim 250 \text{ nm}$ ). We compared the characteristics of the produced interstellar dust analog to the constraints imposed by the ERE observations.

*Conclusions.* As for ERE observations, PL efficiencies and band widths of a-C:H are both correlated to the PL central wavelengths. The excitation responsible for the a-C:H emission is efficient over a wide spectral range that matches the ERE excitation. The present a-C:H encounter difficulties for the diffuse ISM ERE observations ( $\eta \geq 10\%$ ) in simultaneously satisfying the high quantum yield criteria and PL spectral characteristics. We still need to investigate the role of a small number of residual oxygen atoms in the laboratory-produced a-C:H network in quenching the PL yield, as well as to consider the interstellar temperature effect for our analogs.

**Key words.** ISM : dust, extinction – galaxies : ISM – infrared : ISM : lines and bands – radiation mechanisms : non-thermal – astrochemistry – methods : laboratory

# Ion irradiation of carbonaceous interstellar analogues

## Effects of cosmic rays on the 3.4 $\mu\text{m}$ interstellar absorption band

*Astronomy & Astrophysics*, **529**, A146 (2011)

Marie Godard<sup>a</sup>, Géraldine Féraud<sup>b</sup>, Marin Chabot<sup>c</sup>, Yvain Carpentier<sup>b</sup>, Thomas Pino<sup>b</sup>,  
Rosario Brunetto<sup>a</sup>, Jean Duprat<sup>d</sup>, Cécile Engrand<sup>d</sup>, Philippe Bréchnignac<sup>b</sup>,  
Louis d'Hendecourt<sup>a</sup>, Emmanuel Dartois<sup>a</sup>

<sup>a</sup> Institut d'Astrophysique Spatiale; Univ Paris-Sud, bât. 121, F-91405 Orsay, France

<sup>b</sup> Institut des Sciences Moléculaires d'Orsay; Univ Paris-Sud, bât. 210, F-91405 Orsay, France

<sup>c</sup> Institut de Physique Nucléaire d'Orsay; Univ Paris-Sud, bât. 102, F-91405 Orsay, France

<sup>d</sup> Centre de Spectrométrie Nucléaire et de Spectrométrie de Masse; Univ Paris-Sud, bât. 104, F-91405 Orsay, France

Received 29 November 2010 / Accepted 17 March 2011

### Abstract

*Context.* A 3.4  $\mu\text{m}$  absorption band (around 2900  $\text{cm}^{-1}$ ), assigned to aliphatic C-H stretching modes of hydrogenated amorphous carbons (a-C:H), is widely observed in the diffuse interstellar medium, but disappears or is modified in dense clouds. This spectral difference between different phases of the interstellar medium reflects the processing of dust in different environments. Cosmic ray bombardment is one of the interstellar processes that make carbonaceous dust evolve.

*Aims.* We investigate the effects of cosmic rays on the interstellar 3.4  $\mu\text{m}$  absorption band carriers.

*Methods.* Samples of carbonaceous interstellar analogues (a-C:H and soot) were irradiated at room temperature by swift ions with energy in the MeV range (0.2–160 MeV). The dehydrogenation and chemical bonding modifications that occurred during irradiation were studied with IR spectroscopy.

*Results.* For all samples and all ions/energies used, we observed a decrease of the aliphatic C-H absorption bands intensity with the ion fluence. This evolution agrees with a model that describes the hydrogen loss as caused by the molecular recombination of two free H atoms created by the breaking of C-H bonds by the impinging ions. The corresponding destruction cross section and asymptotic hydrogen content are obtained for each experiment and their behaviour over a large range of ion stopping powers are inferred. Using elemental abundances and energy distributions of galactic cosmic rays, we investigated the implications of these results in different astrophysical environments. The results are compared to the processing by UV photons and H atoms in different regions of the interstellar medium.

*Conclusions.* The destruction of aliphatic C-H bonds by cosmic rays occurs in characteristic times of a few  $10^8$  years, and it appears that even at longer time scales, cosmic rays alone cannot explain the observed disappearance of this spectral signature in dense regions. In diffuse interstellar medium, the formation by atomic hydrogen prevails over the destruction by UV photons (destruction by cosmic rays is negligible in these regions). Only the cosmic rays can penetrate into dense clouds and process the corresponding dust. However, they are not efficient enough to completely dehydrogenate the 3.4  $\mu\text{m}$  carriers during the cloud lifetime. This interstellar component should be destroyed in interfaces between diffuse and dense interstellar regions where photons still penetrate but hydrogen is in molecular form.

**Key words.** Cosmic rays – dust, extinction – evolution – methods : laboratory – infrared : ISM – ISM : lines and bands



# Liste des Abréviations

2MASS *Two Micron All Sky Survey*

a-C:H Carbone Amorphe Hydrogéné

AGB *Asymptotic Giant Branch*

AIB Bandes aromatiques infrarouges (*Aromatic Infrared Bands*)

CR Rayon cosmique (*Cosmic Ray*)

CSNSM Centre de Spectrométrie Nucléaire et de Spectrométrie de Masse

ERE Emission Rouge Etendue (ou *Extended Red Emission*)

FTIR Spectroscopie Infrarouge à Transformée de Fourier (*Fourier Transform IR Spectroscopy*)

FWHM Largeur à mi-hauteur (*Full Width at Half Maximum*)

GC *Galactic Center*

HAC Carbone Amorphe Hydrogéné (*Hydrogenated Amorphous Carbon*)

IAS Institut d'Astrophysique Spatiale

IPNO Institut de Physique Nucléaire d'Orsay

IR Infrarouge

ISMO Institut des Sciences Moléculaires d'Orsay

ISRF Champ de rayonnement interstellaire (*Interstellar Standard Radiation Field*)

MIS Milieu Interstellaire

NIRI *Near Infrared Imager/spectrograph*

PAH Hydrocarbure Aromatique Polycyclique (*Polycyclic Aromatic Hydrocarbon*)

PL Photoluminescence

QCC *Quenched Carbonaceous Composite*

RCN *Random Covalent Network*

SRIM *the Stopping and Range of Ions in Matter*

UV Ultraviolet





# Table des figures

1.1	Champ de rayonnement interstellaire ISRF . . . . .	12
1.2	Energies des rayons cosmiques et modulation solaire . . . . .	13
1.3	Cycle de la matière interstellaire . . . . .	16
2.1	Exemples de différentes formes de matière carbonée . . . . .	22
2.2	Le nuage moléculaire Barnard 68 illustrant l'extinction interstellaire . . . . .	24
2.3	Courbe d'extinction du milieu interstellaire . . . . .	27
2.4	Bandes diffuses interstellaires . . . . .	28
2.5	Exemples de bandes d'absorption IR observées en direction du centre galactique . . . . .	29
2.6	Spectre d'émission de la poussière . . . . .	31
2.7	Fluctuations en température des très petits grains interstellaires . . . . .	32
2.8	Spectres de l'ERE observés dans différentes régions interstellaires . . . . .	34
2.9	Propriétés de l'ERE en fonction de l'intensité du champ de rayonnement incident . . . . .	36
2.10	Cycle des poussières interstellaires . . . . .	40
3.1	Observations de la bande d'absorption à $3.4 \mu\text{m}$ dans la Voie Lactée . . . . .	45
3.2	Observations des a-C:H du milieu interstellaire diffus galactique et extragalactique . . . . .	46
3.3	Profondeur optique à $3.4 \mu\text{m}$ en fonction de l'extinction visuelle dans la Galaxie . . . . .	49
3.4	Schéma de la Voie Lactée . . . . .	50
3.5	Bande d'absorption à $3.47 \mu\text{m}$ observée dans les nuages denses . . . . .	52
3.6	Diagramme de phase ternaire (H, C sp <sup>2</sup> , C sp <sup>3</sup> ) pour les carbones amorphes . . . . .	56
3.7	Unités structurales de base proposées pour décrire les a-C:H interstellaires . . . . .	57
3.8	Simulations de spectres IR d'a-C:H comparées au spectre du MIS diffus . . . . .	58
4.1	Image de la région autour d'IRAS 18511+0146 et des sources observées . . . . .	69
4.2	Spectres observés vers S7, S10, and S11 et continuum de la bande à $3.1 \mu\text{m}$ . . . . .	73
4.3	Spectres observés vers S7, S10, and S11 et continuum de la bande à $3.4 \mu\text{m}$ . . . . .	73
4.4	Profondeur optique de l'absorption à $3.4 \mu\text{m}$ observée vers S7, S10 et S11 . . . . .	74
4.5	Comparaison du profil de la bande à $3.4 \mu\text{m}$ observée vers différentes sources . . . . .	75
4.6	Schéma illustrant l'ambiguïté de la distance cinématique . . . . .	77
4.7	Diagramme couleur-couleur ( $J-H$ )-(H-K) de sources autour d'IRAS 18511+0146 . . . . .	79
4.8	Profondeur optique de l'absorption à $3.4 \mu\text{m}$ en fonction de l'extinction visuelle . . . . .	83
5.1	Photo et schéma de l'expérience permettant la production des a-C:H . . . . .	90
5.2	Représentation des différents hydrocarbures utilisés comme précurseurs . . . . .	91
5.3	Cavité micro-onde de type Evenson utilisée pour générer le plasma . . . . .	93
5.4	Photo de différents échantillons d'a-C:H produits . . . . .	96

6.1	Schéma du dispositif permettant la mesure des spectres UV-visibles . . . . .	101
6.2	Photos du dispositif permettant la mesure des spectres UV-visibles . . . . .	101
6.3	Transmission UV-visible d'un échantillon d'a-C:H . . . . .	102
6.4	Coefficient d'absorption UV-visible de différents types d'a-C:H produits . . . . .	103
6.5	Détermination du gap de Tauc $E_{Tauc}$ . . . . .	104
6.6	Valeurs de $E_{Tauc}$ en fonction de celles de $E_{04}$ pour les a-C:H produits . . . . .	104
6.7	Schéma d'un spectromètre infrarouge FTIR . . . . .	105
6.8	Spectre de transmission infrarouge d'a-C:H 1 et 2, avec et sans les franges . . .	106
6.9	Coefficient d'absorption infrarouge de différents a-C:H . . . . .	107
6.10	Coefficient d'absorption de la bande à $3.4 \mu m$ des a-C:H produits . . . . .	108
6.11	Comparaison des spectres IR des a-C:H produits avec ceux observés dans le MIS	109
6.12	Multiples réflexions dans l'épaisseur de l'échantillon déposé sur un substrat . . .	111
6.13	Variation de l'amplitude relative des franges en fonction de l'indice $n_0$ du film .	115
6.14	Transmission moyenne $\langle T \rangle$ d'un film sur un substrat (hors absorption) . . . .	116
6.15	Variation attendue de l'amplitude des franges avec la transmission moyenne . . .	117
6.16	Corrélation entre profondeur optique intégrée à $3.4 \mu m$ et épaisseur des a-C:H .	118
6.17	Indice de réfraction d'a-C:H en fonction de leur gap optique . . . . .	119
6.18	Fraction $sp^2$ de différents échantillons d'a-C:H en fonction du gap de Tauc . . .	120
6.19	Corrélations entre l'indice, le contenu en hydrogène et la densité des a-C:H . . .	122
6.20	Coefficient d'absorption intégré sur la bande à $3.4 \mu m$ en fonction du gap optique	123
7.1	Photo montrant la photoluminescence de différents a-C:H sous une lampe UV .	127
7.2	Schémas du fluorimètre permettant les mesures de photoluminescence . . . . .	128
7.3	Schéma et photo du support de l'échantillon dans le fluorimètre . . . . .	129
7.4	Photo du Spectralon ( $\mathcal{R}(\lambda) = 10\%$ ) et diffusion lambertienne . . . . .	130
7.5	Photo de la sphère intégrante couplée au fluorimètre . . . . .	130
7.6	Géométrie de l'émission par un point source d'un film sur un substrat . . . . .	133
7.7	Modification de l'angle solide à la traversée d'une interface entre deux milieux .	133
7.8	Rendement quantique absolu de PL du BGO . . . . .	137
7.9	Spectres de photoluminescence d'un échantillon d'a-C:H . . . . .	138
7.10	Variation de la couleur de photoluminescence des a-C:H avec le gap optique $E_{04}$	138
7.11	Variation du rendement absolu de PL $\eta$ des a-C:H avec le gap optique $E_{04}$ . . .	140
7.12	Variation du rendement $\eta$ de PL des a-C:H avec la fraction d'hybridation $sp^2$ . .	140
7.13	Variation du rendement $\eta$ des a-C:H avec la longueur d'onde centrale de la PL .	141
7.14	Variation de la largeur avec la longueur d'onde centrale de la bande de PL . . .	141
7.15	Variation de $\lambda_{PL}$ avec la longueur d'onde d'excitation $\lambda_{exc}$ . . . . .	143
7.16	Variation du rendement absolu $\eta$ des a-C:H avec la longueur d'onde d'excitation	143
7.17	Comparaison des caractéristiques spectrales de l'ERE et de la PL des a-C:H . .	145
7.18	Comparaison des rendements et couleurs de l'ERE et avec la PL des a-C:H . . .	147
7.19	Diagramme illustrant la difficulté d'estimer le rendement de l'ERE . . . . .	149
7.20	Photos d'un échantillon montrant la fatigue de la PL . . . . .	152

7.21	Mesures de la fatigue de PL d'un échantillon soumis à une excitation UV . . . .	152
8.1	Spectres IR des différents types d'échantillons étudiés (avant irradiation) . . . .	162
8.2	Schéma et photo du montage expérimental au TANDEM . . . . .	163
8.3	Courbe de Bragg des ions utilisés lors des irradiations . . . . .	165
8.4	Photos d'échantillons après irradiation . . . . .	167
8.5	Exemples de destruction par irradiation de la bande d'absorption à $3.4 \mu\text{m}$ . . .	169
8.6	Evolution relative de la profondeur optique intégrée de la bande à $3.4 \mu\text{m}$ . . .	170
8.7	Schéma de l'interaction d'un ion énergétique avec l'hydrogène d'un film . . . .	170
8.8	Comparaison des ajustements (fonction exponentielle et modèle de recombinaison)	172
8.9	Sections efficaces de destruction $\sigma_d$ en fonction du pouvoir d'arrêt $S_e$ . . . . .	174
8.10	Sections efficaces de destruction $\sigma_d$ des a-C:H en fonction du pouvoir d'arrêt $S_e$	176
8.11	Valeurs asymptotiques $A_f/A_i$ des a-C:H en fonction du pouvoir d'arrêt $S_e$ . . .	178
8.12	Modification du spectre IR d'un a-C:H 1 durant l'irradiation . . . . .	180
8.13	Section efficace de formation $\sigma_f$ des liaisons CC $\text{sp}^1$ des a-C:H en fonction de $S_e$	181
8.14	Modification de la structure de la bande à $3.4 \mu\text{m}$ des a-C:H durant l'irradiation	183
8.15	Distributions d'abondance des rayons cosmiques en fonction de $Z$ . . . . .	185
8.16	Flux différentiel $dN/dE_A$ de CR en fonction de leur énergie par nucléon $E_A$ . . .	185
8.17	Evolution des C-H aliphatiques interstellaires sous l'effet des rayons cosmiques .	189
8.18	Contributions de CR à la destruction pour $A_f/A_i \neq 0$ en fonction du temps . . .	191
A.1	Système de coordonnées et angles utilisées pour calculer le champ électrique $\vec{E}$ .	210
A.2	Schéma de la géométrie de l'émission par un dipôle dans un film . . . . .	215
A.3	Schéma de la géométrie de l'émission pour le faisceau direct D . . . . .	216
A.4	Schéma de la géométrie de l'émission pour le faisceau réfléchi R . . . . .	218
B.1	Principe des mesures de photoluminescence avec une sphère intégrante . . . . .	226
C.1	Sections efficaces $\sigma_d$ obtenues avec l'ajustement exponentiel, en fonction de $S_e$ .	231



# Liste des tableaux

1.1	Caractéristiques physiques des différentes phases du milieu interstellaire . . . . .	8
1.2	Molécules ou radicaux observés dans les milieux interstellaires et circumstellaires	9
2.1	Abondance et déplétions des principaux éléments lourds . . . . .	19
2.2	Bandes d'émission infrarouge aromatiques (AIB) . . . . .	33
4.1	Log des observations . . . . .	70
4.2	Sources observées autour d'IRAS 18511+0146 . . . . .	70
4.3	Profondeur optique des différentes bandes d'absorption de chaque ligne de visée	75
4.4	Récapitulatif des propriétés des sources pour les distances proche et lointaine . .	82
5.1	Différents types de substrat et leurs propriétés . . . . .	95
5.2	Conditions expérimentales de production des a-C:H 1 et des a-C:H 2 . . . . .	97
6.1	Principaux modes de vibration infrarouges des a-C:H . . . . .	110
8.1	Caractéristiques des échantillons avant irradiation . . . . .	162
8.2	Expériences d'irradiation ionique d'analogues interstellaires . . . . .	164
8.3	Paramètres de la destruction de la bande à $3.4 \mu\text{m}$ par les irradiations . . . . .	173
8.4	Valeurs des paramètres d'ajustement de $\sigma_d$ (Eq. 8.5) . . . . .	176
8.5	Comparaison des différentes distributions d'abondance $A_{/H}(Z)$ des CR . . . . .	187
8.6	Pourcentage de destruction $\%_d$ après $t = 3 \cdot 10^7$ ans d'exposition aux CR . . . . .	189
8.7	Contributions de quelques CR à l'ionisation et la destruction pour $A_f/A_i = 0$ . .	190
8.8	Pourcentage de destruction $\%_d$ après $t = 3 \cdot 10^7$ ans pour $E_0 = 200 \text{ MeV/nuc}$ l . .	192
8.9	Synthèse des temps caractéristiques de destruction et formation des C-H alipha- tiques dans les différentes phases du MIS . . . . .	194
A.1	Définitions des axes, angles, et autres notations utilisées . . . . .	211
C.1	Paramètres de la destruction obtenus avec l'ajustement exponentiel . . . . .	230
C.2	Valeurs des paramètres d'ajustement de $\sigma_d$ (Eq. 8.5) . . . . .	230



# Bibliographie

- [Acke & van den Ancker 2006] B. Acke et M. E. van den Ancker. *A survey for nanodiamond features in the 3 micron spectra of Herbig Ae/Be stars*. A&A, vol. 457, pages 171–181, Octobre 2006. (Cité en page 22.)
- [Adamson *et al.* 1990] A. J. Adamson, D. C. B. Whittet et W. W. Duley. *The 3.4-micron interstellar absorption feature in CYG OB2 no. 12*. MNRAS, vol. 243, pages 400–404, Avril 1990. (Cité en pages 44, 48, 49, 56, 82 et 83.)
- [Adamson *et al.* 1999] A. J. Adamson, D. C. B. Whittet, A. Chrysostomou, J. H. Hough, D. K. Aitken, G. S. Wright et P. F. Roche. *Spectropolarimetric Constraints on the Nature of the 3.4 Micron Absorber in the Interstellar Medium*. ApJ, vol. 512, pages 224–229, Février 1999. (Cité en pages 37 et 59.)
- [Adel *et al.* 1989] M. E. Adel, O. Amir, R. Kalish et L. C. Feldman. *Ion-beam-induced hydrogen release from  $\alpha$ -C:H: A bulk molecular recombination model*. Journal of Applied Physics, vol. 66, pages 3248–3251, Octobre 1989. (Cité en pages 160, 168, 171, 174, 175, 179, 230 et 231.)
- [Allamandola *et al.* 1985] L. J. Allamandola, A. G. G. M. Tielens et J. R. Barker. *Polycyclic aromatic hydrocarbons and the unidentified infrared emission bands - Auto exhaust along the Milky Way*. ApJ, vol. 290, pages L25–L28, Mars 1985. (Cité en page 31.)
- [Allamandola *et al.* 1988] L. J. Allamandola, S. A. Sandford et G. J. Valero. *Photochemical and thermal evolution of interstellar/precometary ice analogs*. Icarus, vol. 76, pages 225–252, Novembre 1988. (Cité en page 63.)
- [Allamandola *et al.* 1989] L. J. Allamandola, A. G. G. M. Tielens et J. R. Barker. *Interstellar polycyclic aromatic hydrocarbons - The infrared emission bands, the excitation/emission mechanism, and the astrophysical implications*. ApJS, vol. 71, pages 733–775, Décembre 1989. (Cité en page 32.)
- [Allamandola *et al.* 1992] L. J. Allamandola, S. A. Sandford, A. G. G. M. Tielens et T. M. Herbst. *Infrared spectroscopy of dense clouds in the C-H stretch region - Methanol and 'diamonds'*. ApJ, vol. 399, pages 134–146, Novembre 1992. (Cité en page 51.)
- [Allamandola *et al.* 1993] L. J. Allamandola, S. A. Sandford, A. G. G. M. Tielens et T. M. Herbst. *Diamonds in dense molecular clouds - A challenge to the standard interstellar medium paradigm*. Science, vol. 260, no. 5104, pages 64–66, Avril 1993. (Cité en page 51.)
- [Allen & Wickramasinghe 1981] D. A. Allen et D. T. Wickramasinghe. *Diffuse interstellar absorption bands between 2.9 and 4.0 microns*. Nature, vol. 294, pages 239–+, Novembre 1981. (Cité en pages 44 et 48.)
- [Anderson *et al.* 1996] C. M. Anderson, A. J. Weitenbeck, A. D. Code, K. H. Nordsieck, M. R. Meade, B. L. Babler, N. E. B. Zellner, K. S. Bjorkman, G. K. Fox, J. J. Johnson, W. T.



- Sanders, O. L. Lupie et R. J. Edgar. *Ultraviolet Interstellar Polarization of Galactic Starlight. I. Observations by the Wisconsin Ultraviolet Photo Polarimeter Experiment*. AJ, vol. 112, pages 2726–+, Décembre 1996. (Cité en page 37.)
- [Angus & Jansen 1988] J. C. Angus et F. Jansen. *Dense “diamondlike” hydrocarbons as random covalent networks*. Journal of Vacuum Science Technology, vol. 6, pages 1778–1782, Mai 1988. (Cité en pages 53 et 56.)
- [Araya *et al.* 2004] E. Araya, P. Hofner, H. Linz, M. Sewilo, C. Watson, E. Churchwell, L. Olmi et S. Kurtz. *A Search for H<sub>2</sub>CO 6 Centimeter Emission toward Young Massive Stellar Objects*. ApJS, vol. 154, pages 579–584, Octobre 2004. (Cité en pages 76 et 80.)
- [Araya *et al.* 2007] E. Araya, P. Hofner, W. M. Goss, H. Linz, S. Kurtz et L. Olmi. *A Search for Formaldehyde 6 cm Emission toward Young Stellar Objects. II. H<sub>2</sub>CO and H110 $\alpha$  Observations*. ApJS, vol. 170, pages 152–174, Mai 2007. (Cité en pages 76 et 80.)
- [Arendt *et al.* 2010] R. G. Arendt, E. Dwek, W. P. Blair, P. Ghavamian, U. Hwang, K. S. Long, R. Petre, J. Rho et P. F. Winkler. *Spitzer Observations of Dust Destruction in the Puppis A Supernova Remnant*. ApJ, vol. 725, pages 585–597, Décembre 2010. (Cité en page 38.)
- [Asplund *et al.* 2009] M. Asplund, N. Grevesse, A. J. Sauval et P. Scott. *The Chemical Composition of the Sun*. ARA&A, vol. 47, pages 481–522, Septembre 2009. (Cité en page 19.)
- [Bakes & Tielens 1994] E. L. O. Bakes et A. G. G. M. Tielens. *The photoelectric heating mechanism for very small graphitic grains and polycyclic aromatic hydrocarbons*. ApJ, vol. 427, pages 822–838, Juin 1994. (Cité en page 19.)
- [Balachandran 1990] S. Balachandran. *Lithium depletion and rotation in main-sequence stars*. ApJ, vol. 354, pages 310–332, Mai 1990. (Cité en page 70.)
- [Baptista & Zawislak 2004] D. L. Baptista et F. C. Zawislak. *Hard and sp<sup>2</sup>-rich amorphous carbon structure formed by ion beam irradiation of fullerene, a-C and polymeric a-C :H films*. Diamond and Related Materials, vol. 13, no. 10, pages 1791 – 1801, 2004. (Cité en pages 120 et 121.)
- [Baptista *et al.* 2004] D. L. Baptista, I. T. S. Garcia et F. C. Zawislak. *Loss of hydrogen from ion irradiated photoresist and a-C :H films*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, vol. 219, pages 846–850, Juin 2004. (Cité en pages 160, 171, 174, 175, 177, 179, 230 et 231.)
- [Bastien 2007] P. Bastien. *Dust Polarization from Extinction Measurements*. In M.-A. Miville-Deschênes & F. Boulanger, editeur, EAS Publications Series, volume 23 of EAS Publications Series, pages 131–146, 2007. (Cité en page 37.)
- [Baumann *et al.* 1987] H. Baumann, T. Rupp, K. Bethge, P. Koidl et C. Wild. *Hydrogen release from a-C/H films by MeV irradiation*. In European Materials Research Society Conference Proceedings, volume 17, pages 343–350, 1987. (Cité en pages 160, 174, 175, 230 et 231.)

- [Bernard *et al.* 1999] J. P. Bernard, A. Abergel, I. Ristorcelli, F. Pajot, J. P. Torre, F. Boulanger, M. Giard, G. Lagache, G. Serra, J. M. Lamarre, J. L. Puget, F. Lepeintre et L. Cambr sy. *PRONAOS observations of MCLD 123.5 + 24.9 : cold dust in the Polaris cirrus cloud*. A&A, vol. 347, pages 640–649, Juillet 1999. (Cit  en page 40.)
- [Bern  *et al.* 2008] O. Bern , C. Joblin, M. Rapacioli, J. Thomas, J.-C. Cuillandre et Y. Deville. *Extended Red Emission and the evolution of carbonaceous nanograins in NGC 7023*. A&A, vol. 479, pages L41–L44, Mars 2008. (Cit  en page 35.)
- [Bernstein *et al.* 1995] M. P. Bernstein, S. A. Sandford, L. J. Allamandola, S. Chang et M. A. Scharberg. *Organic Compounds Produced by Photolysis of Realistic Interstellar and Cometary Ice Analogs Containing Methanol*. ApJ, vol. 454, pages 327–+, Novembre 1995. (Cit  en page 63.)
- [Bernstein *et al.* 2002] R. A. Bernstein, W. L. Freedman et B. F. Madore. *The First Detections of the Extragalactic Background Light at 3000, 5500, and 8000  . III. Cosmological Implications*. ApJ, vol. 571, pages 107–128, Mai 2002. (Cit  en page 30.)
- [Bessell & Brett 1988] M. S. Bessell et J. M. Brett. *JHKLM photometry - Standard systems, passbands, and intrinsic colors*. PASP, vol. 100, pages 1134–1151, Septembre 1988. (Cit  en pages 78 et 79.)
- [Bianchi & Schneider 2007] S. Bianchi et R. Schneider. *Dust formation and survival in supernova ejecta*. MNRAS, vol. 378, pages 973–982, Juillet 2007. (Cit  en page 38.)
- [Blitz 1991] L. Blitz. *Molecular clouds at high Z*. In H. Bloemen, editeur, *The Interstellar Disk-Halo Connection in Galaxies*, volume 144 of *IAU Symposium*, pages 41–52, 1991. (Cit  en page 82.)
- [Boesgaard & Tripicco 1986] A. M. Boesgaard et M. J. Tripicco. *Lithium in early F dwarfs*. ApJ, vol. 303, pages 724–739, Avril 1986. (Cit  en page 70.)
- [Bohlin *et al.* 1978] R. C. Bohlin, B. D. Savage et J. F. Drake. *A survey of interstellar H I from L-alpha absorption measurements. II*. ApJ, vol. 224, pages 132–142, Ao t 1978. (Cit  en pages 25, 27 et 60.)
- [Bond & Bergstrom 2006] Tami C. Bond et Robert W. Bergstrom. *Light Absorption by Carbonaceous Particles : An Investigative Review*. Aerosol Science and Technology, vol. 40, no. 1, pages 27–67, Jan 2006. (Cit  en page 161.)
- [Bottinelli *et al.* 2010] S. Bottinelli, A. C. Adwin Boogert, J. Bouwman, M. Beckwith, E. F. van Dishoeck, K. I.  berg, K. M. Pontoppidan, H. Linnartz, G. A. Blake, N. J. Evans et F. Lahuis. *The c2d Spitzer Spectroscopic Survey of Ices Around Low-mass Young Stellar Objects. IV. NH   and CH  OH*. ApJ, vol. 718, pages 1100–1117, Ao t 2010. (Cit  en page 51.)
- [Boulanger *et al.* 1996] F. Boulanger, A. Abergel, J.-P. Bernard, W. B. Burton, F.-X. D sert, D. Hartmann, G. Lagache et J.-L. Puget. *The dust/gas correlation at high Galactic latitude*. A&A, vol. 312, pages 256–262, Ao t 1996. (Cit  en page 30.)

- [Bourée *et al.* 1998] J. E. Bourée, T. Heitz, C. Godet, B. Drévillon, J. P. Conde, V. Chu, M. N. Berberan-Santos et A. Fedorov. *Photoluminescence of polymer-like amorphous carbon films grown in different plasma reactors*. *Journal of Non-Crystalline Solids*, vol. 227-230, no. Part 1, pages 574 – 578, 1998. (Cité en pages 119, 120, 139 et 140.)
- [Bouwman *et al.* 2009] J. Bouwman, D. M. Paardekooper, H. M. Cuppen, H. Linnartz et L. J. Allamandola. *Real-Time Optical Spectroscopy of Vacuum Ultraviolet Irradiated Pyrene :H<sub>2</sub>O Interstellar Ice*. *ApJ*, vol. 700, pages 56–62, Juillet 2009. (Cité en page 28.)
- [Brand & Blitz 1993] J. Brand et L. Blitz. *The Velocity Field of the Outer Galaxy*. *A&A*, vol. 275, pages 67–+, Août 1993. (Cité en page 76.)
- [Brand *et al.* 2001] J. Brand, R. Cesaroni, F. Palla et S. Molinari. *A molecular-line study of clumps with embedded high-mass protostar candidates*. *A&A*, vol. 370, pages 230–264, Avril 2001. (Cité en page 76.)
- [Bréchnignac & Pino 1999] P. Bréchnignac et T. Pino. *Electronic spectra of cold gas phase PAH cations : Towards the identification of the Diffuse Interstellar Bands carriers*. *A&A*, vol. 343, pages L49–L52, Mars 1999. (Cité en page 28.)
- [Bridger *et al.* 1994] A. Bridger, G. S. Wright et T. R. Geballe. *Dust Absorption in NGC1068*. In I. S. McLean, éditeur, *Infrared Astronomy with Arrays : The Next Generation*, volume 190 of *Astrophysics and Space Science Library*, pages 537–+, 1994. (Cité en page 52.)
- [Brooke *et al.* 1996] T. Y. Brooke, K. Sellgren et R. G. Smith. *A Study of Absorption Features in the 3 Micron Spectra of Molecular Cloud Sources with H<sub>2</sub>O Ice Bands*. *ApJ*, vol. 459, pages 209–+, Mars 1996. (Cité en page 51.)
- [Brooke *et al.* 1999] T. Y. Brooke, K. Sellgren et T. R. Geballe. *New 3 Micron Spectra of Young Stellar Objects with H<sub>2</sub>O Ice Bands*. *ApJ*, vol. 517, pages 883–900, Juin 1999. (Cité en pages 51, 52, 72 et 75.)
- [Brucato *et al.* 2004] J. R. Brucato, G. Strazzulla, G. Baratta et L. Colangeli. *Forsterite amorphisation by ion irradiation : Monitoring by infrared spectroscopy*. *A&A*, vol. 413, pages 395–401, Janvier 2004. (Cité en page 39.)
- [Brunetto *et al.* 2004] R. Brunetto, G. A. Baratta et G. Strazzulla. *Raman spectroscopy of ion irradiated diamond*. *Journal of Applied Physics*, vol. 96, no. 1, pages 380–386, 2004. (Cité en page 166.)
- [Brunetto *et al.* 2009] R. Brunetto, T. Pino, E. Dartois, A.-T. Cao, L. D’Hendecourt, G. Strazzulla et P. Bréchnignac. *Comparison of the Raman spectra of ion irradiated soot and collected extraterrestrial carbon*. *Icarus*, vol. 200, pages 323–337, Mars 2009. (Cité en page 160.)
- [Bubenzer *et al.* 1983] A. Bubenzer, B. Dischler, G. Brandt et P. Koidl. *rf-plasma deposited amorphous hydrogenated hard carbon thin films : Preparation, properties, and applications*. *Journal of Applied Physics*, vol. 54, no. 8, pages 4590–4595, 1983. (Cité en pages 119, 120, 121 et 123.)

- [Butchart *et al.* 1986] I. Butchart, A. D. McFadzean, D. C. B. Whittet, T. R. Geballe et J. M. Greenberg. *Three micron spectroscopy of the galactic centre source IRS 7*. A&A, vol. 154, pages L5–L7, Janvier 1986. (Cité en page 44.)
- [Cami 2002] J. Cami. *Molecular gas and dust around evolved stars*. PhD thesis, University of Amsterdam, Juin 2002. (Cité en page 38.)
- [Cardelli *et al.* 1989] J. A. Cardelli, G. C. Clayton et J. S. Mathis. *The relationship between infrared, optical, and ultraviolet extinction*. ApJ, vol. 345, pages 245–256, Octobre 1989. (Cité en page 25.)
- [Cardelli *et al.* 1996] J. A. Cardelli, D. M. Meyer, M. Jura et B. D. Savage. *The Abundance of Interstellar Carbon*. ApJ, vol. 467, pages 334–+, Août 1996. (Cité en pages 18 et 19.)
- [Carpentier 2009] Y. Carpentier. *De la flamme de laboratoire au milieu interstellaire : signatures spectrales d’entités aromatiques libres ou assemblées*. PhD thesis, Ecole doctorale d’Astronomie et d’Astrophysique d’Île-de-France, Décembre 2009. (Cité en page 161.)
- [Carrez *et al.* 2002a] P. Carrez, K. Demyk, P. Cordier, L. Gengembre, J. Grimblot, L. D’Hendecourt, A. P. Jones et H. Leroux. *Low-energy helium ion irradiation-induced amorphization and chemical changes in olivine : Insights for silicate dust evolution in the interstellar medium*. Meteoritics and Planetary Science, vol. 37, pages 1599–1614, Novembre 2002. (Cité en page 39.)
- [Carrez *et al.* 2002b] P. Carrez, K. Demyk, H. Leroux, P. Cordier, A. P. Jones et L. D’Hendecourt. *Low-temperature crystallisation of MgSiO<sub>3</sub> glasses under electron irradiation : Possible implications for silicate dust evolution in circumstellar environments*. Meteoritics and Planetary Science, vol. 37, pages 1615–1622, Novembre 2002. (Cité en page 39.)
- [Cecchi-Pestellini *et al.* 2008] C. Cecchi-Pestellini, G. Mallocci, G. Mulas, C. Joblin et D. A. Williams. *The role of the charge state of PAHs in ultraviolet extinction*. A&A, vol. 486, pages L25–L29, Août 2008. (Cité en page 26.)
- [Cernicharo *et al.* 2001a] J. Cernicharo, A. M. Heras, J. R. Pardo, A. G. G. M. Tielens, M. Guélin, E. Dartois, R. Neri et L. B. F. M. Waters. *Methylpolyynes and Small Hydrocarbons in CRL 618*. ApJ, vol. 546, pages L127–L130, Janvier 2001. (Cité en page 61.)
- [Cernicharo *et al.* 2001b] J. Cernicharo, A. M. Heras, A. G. G. M. Tielens, J. R. Pardo, F. Herpin, M. Guélin et L. B. F. M. Waters. *Infrared Space Observatory’s Discovery of C<sub>4</sub>H<sub>2</sub>, C<sub>6</sub>H<sub>2</sub>, and Benzene in CRL 618*. ApJ, vol. 546, pages L123–L126, Janvier 2001. (Cité en page 61.)
- [Chan & Kwok 1988] S. J. Chan et S. Kwok. *The transition from oxygen-rich to carbon stars*. ApJ, vol. 334, pages 362–396, Novembre 1988. (Cité en page 38.)
- [Chang *et al.* 1995] H.-C. Chang, J.-C. Lin, J.-Y. Wu et K.-H. Chen. *Infrared spectroscopy and vibrational relaxation of CH<sub>x</sub> and CD<sub>x</sub> stretches on synthetic diamond nanocrystal surfaces*. The Journal of Physical Chemistry, vol. 99, no. 28, pages 11081–11088, 1995. (Cité en page 22.)

- [Chang *et al.* 2006] H.-C. Chang, K. Chen et S. Kwok. *Nanodiamond as a Possible Carrier of Extended Red Emission*. ApJ, vol. 639, pages L63–L66, Mars 2006. (Cité en page 35.)
- [Chen *et al.* 2010] P.-S. Chen, X.-H. Yang et H.-G. Shan. *Infrared spectral evolution of carbon stars*. Research in Astronomy and Astrophysics, vol. 10, pages 363–382, Avril 2010. (Cité en page 38.)
- [Cherchneff 2010] I. Cherchneff. *Dust Formation in Massive Stars and Their Explosive Ends*. In C. Leitherer, P. Bennett, P. Morris J. van Loon, editeur, Hot and Cool : Bridging Gaps in Massive Star Evolution, volume 425 of Astronomical Society of the Pacific Conference Series, pages 237–+, Juin 2010. (Cité en page 38.)
- [Chernyshov *et al.* 1991] S.V. Chernyshov, E.I. Terukov, V.A. Vassilyev et A.S. Volkov. Radiative recombination in  $\alpha$ -Si<sub>1-x</sub>C<sub>x</sub>:H films. Journal of Non-Crystalline Solids, vol. 134, no. 3, pages 218 – 225, 1991. (Cité en pages 138, 139, 144, 145, 150, 154 et 155.)
- [Chiar & Tielens 2001] J. E. Chiar et A. G. G. M. Tielens. *Circumstellar Carbonaceous Material Associated with Late-Type Dusty WC Wolf-Rayet Stars*. ApJ, vol. 550, pages L207–L211, Avril 2001. (Cité en pages 30, 53, 54, 82 et 83.)
- [Chiar *et al.* 1996] J. E. Chiar, A. J. Adamson et D. C. B. Whittet. *Three Micron Hydrocarbon and Methanol Absorption in Taurus*. ApJ, vol. 472, pages 665–+, Décembre 1996. (Cité en pages 51 et 52.)
- [Chiar *et al.* 1998] J. E. Chiar, Y. J. Pendleton, T. R. Geballe et A. G. G. M. Tielens. *Near-Infrared Spectroscopy of the Proto-Planetary Nebula CRL 618 and the Origin of the Hydrocarbon Dust Component in the Interstellar Medium*. ApJ, vol. 507, pages 281–286, Novembre 1998. (Cité en page 61.)
- [Chiar *et al.* 2000] J. E. Chiar, A. G. G. M. Tielens, D. C. B. Whittet, W. A. Schutte, A. C. A. Boogert, D. Lutz, E. F. van Dishoeck et M. P. Bernstein. *The Composition and Distribution of Dust along the Line of Sight toward the Galactic Center*. ApJ, vol. 537, pages 749–762, Juillet 2000. (Cité en pages 47, 48, 53, 54, 75, 82 et 83.)
- [Chiar *et al.* 2002] J. E. Chiar, A. J. Adamson, Y. J. Pendleton, D. C. B. Whittet, D. A. Caldwell et E. L. Gibb. *Hydrocarbons, Ices, and “XCN” in the Line of Sight toward the Galactic Center*. ApJ, vol. 570, pages 198–209, Mai 2002. (Cité en pages 46, 48, 82 et 83.)
- [Chiar *et al.* 2006] J. E. Chiar, A. J. Adamson, D. C. B. Whittet, A. Chrysostomou, J. H. Hough, T. H. Kerr, R. E. Mason, P. F. Roche et G. Wright. *Spectropolarimetry of the 3.4  $\mu$ m Feature in the Diffuse ISM toward the Galactic Center Quintuplet Cluster*. ApJ, vol. 651, pages 268–271, Novembre 2006. (Cité en pages 37, 48 et 59.)
- [Chlewicki & Laureijs 1987] G. Chlewicki et R. J. Laureijs. *Visual and infrared fluorescence from L1780*. In A. Leger, L. D’Hendecourt, & N. Boccarda, editeur, NATO ASIC Proc. 191 : Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Astrophysics, pages 335–337, 1987. (Cité en page 33.)



- [Chlewicki & Laureijs 1988] G. Chlewicki et R. J. Laureijs. *Model of grain properties based on IRAS observations. I - Evidence for new particle populations*. A&A, vol. 207, pages L11+, Décembre 1988. (Cité en page 30.)
- [Choi 2001] S. Choi. *Wide wavelength-range optical studies of hydrogenated amorphous carbon films : from 700 nm to 10  $\mu$ m*. Applied Surface Science, vol. 169, pages 217–222, Janvier 2001. (Cité en pages 119, 120, 121 et 123.)
- [Clayton & Nittler 2004] D. D. Clayton et L. R. Nittler. *Astrophysics with Presolar Stardust*. ARA&A, vol. 42, pages 39–78, Septembre 2004. (Cité en page 38.)
- [Clayton *et al.* 1995] G. C. Clayton, M. J. Wolff, R. G. Allen et O. L. Lupie. *Ultraviolet interstellar linear polarization. 2 : The wavelength dependence*. ApJ, vol. 445, pages 947–957, Juin 1995. (Cité en page 37.)
- [Cohen *et al.* 1975] M. Cohen, C. M. Anderson, A. Cowley, G. V. Coyne, W. Fawley, T. R. Gull, E. A. Harlan, G. H. Herbig, F. Holden, H. S. Hudson, R. O. Jakoubek, H. M. Johnson, K. M. Merrill, F. H. Schiffer, B. T. Soifer et B. Zuckerman. *The peculiar object HD 44179 ('The red rectangle')*. ApJ, vol. 196, pages 179–189, Février 1975. (Cité en page 33.)
- [Compagnini *et al.* 1992] G. Compagnini, L. Calcagno et G. Foti. *Hydrogen effect on atomic configuration of keV-ion-irradiated carbon*. Phys. Rev. Lett., vol. 69, pages 454–457, Juillet 1992. (Cité en pages 120 et 121.)
- [Compiègne *et al.* 2011] M. Compiègne, L. Verstraete, A. Jones, J.-P. Bernard, F. Boulanger, N. Flagey, J. Le Bourlot, D. Paradis et N. Ysard. *The global dust SED : tracing the nature and evolution of dust with DustEM*. A&A, vol. 525, pages A103+, Janvier 2011. (Cité en pages 21, 23 et 31.)
- [Compiegne 2011] M. Compiegne. *Interstellar dust*. ArXiv e-prints, Avril 2011. (Cité en page 27.)
- [Cotera *et al.* 2000] A. S. Cotera, J. P. Simpson, E. F. Erickson, S. W. J. Colgan, M. G. Burton et D. A. Allen. *Interstellar Extinction in the Vicinity of the Galactic Center*. ApJS, vol. 129, pages 123–146, Juillet 2000. (Cité en page 84.)
- [Cravens & Dalgarno 1978] T. E. Cravens et A. Dalgarno. *Ionization, dissociation, and heating efficiencies of cosmic rays in a gas of molecular hydrogen*. ApJ, vol. 219, pages 750–752, Janvier 1978. (Cité en page 187.)
- [Cutri *et al.* 2003] R. M. Cutri, M. F. Skrutskie, S. van Dyk, C. A. Beichman, J. M. Carpenter, T. Chester, L. Cambresy, T. Evans, J. Fowler, J. Gizis, E. Howard, J. Huchra, T. Jarrett, E. L. Kopan, J. D. Kirkpatrick, R. M. Light, K. A. Marsh, H. McCallon, S. Schneider, R. Stiening, M. Sykes, M. Weinberg, W. A. Wheaton, S. Wheelock et N. Zacarias. *2MASS All Sky Catalog of point sources*. NASA/IPAC Infrared Science Archive, Juin 2003. (Cité en page 71.)

- [Dalgarno 2006] A. Dalgarno. *Interstellar Chemistry Special Feature : The galactic cosmic ray ionization rate*. Proceedings of the National Academy of Science, vol. 103, pages 12269–12273, Août 2006. (Cité en page 187.)
- [Darbon *et al.* 1998] S. Darbon, J.-M. Perrin et J.-P. Sivan. *Extended red emission (ERE) detected in the 30 Doradus nebula*. A&A, vol. 333, pages 264–268, Mai 1998. (Cité en pages 33, 126 et 144.)
- [Darbon *et al.* 1999] S. Darbon, J.-M. Perrin et J.-P. Sivan. *Observational constraints on the ERE interpretation*. A&A, vol. 348, pages 990–992, Août 1999. (Cité en pages 33, 142, 144, 145, 146 et 150.)
- [Darbon *et al.* 2000] S. Darbon, A. Zavagno, J.-M. Perrin, C. Savine, V. Ducci et J.-P. Sivan. *Extended red emission and unidentified infrared bands in the galactic compact H II region Sh 152*. A&A, vol. 364, pages 723–731, Décembre 2000. (Cité en pages 33 et 144.)
- [Dartois & d’Hendecourt 2001] E. Dartois et L. d’Hendecourt. *Search for NH<sub>3</sub> ice in cold dust envelopes around YSOs*. A&A, vol. 365, pages 144–156, Janvier 2001. (Cité en page 51.)
- [Dartois & Muñoz-Caro 2007] E. Dartois et G. M. Muñoz-Caro. *Carbonaceous dust grains in luminous infrared galaxies. Spitzer/IRS reveals a-C :H as an abundant and ubiquitous ISM component*. A&A, vol. 476, pages 1235–1242, Décembre 2007. (Cité en pages 47, 51 et 52.)
- [Dartois *et al.* 2002] E. Dartois, L. d’Hendecourt, W. Thi, K. M. Pontoppidan et E. F. van Dishoeck. *Combined VLT ISAAC/ISO SWS spectroscopy of two protostellar sources. The importance of minor solid state features*. A&A, vol. 394, pages 1057–1068, Novembre 2002. (Cité en page 51.)
- [Dartois *et al.* 2004a] E. Dartois, O. Marco, G. M. Muñoz-Caro, K. Brooks, D. Deboffle et L. d’Hendecourt. *Organic matter in Seyfert 2 nuclei : Comparison with our Galactic center lines of sight*. A&A, vol. 423, pages 549–558, Août 2004. (Cité en pages 47, 48, 52, 60, 63, 82 et 83.)
- [Dartois *et al.* 2004b] E. Dartois, G. M. Muñoz Caro, D. Deboffle et L. D’Hendecourt. *Diffuse interstellar medium organic polymers. Photoproduction of the 3.4, 6.85 and 7.25  $\mu$ m features*. A&A, vol. 423, pages L33–L36, Août 2004. (Cité en pages 46, 47, 51, 58, 64, 108 et 109.)
- [Dartois *et al.* 2005] E. Dartois, G. M. Muñoz Caro, D. Deboffle, G. Montagnac et L. D’Hendecourt. *Ultraviolet photoproduction of ISM dust. Laboratory characterisation and astrophysical relevance*. A&A, vol. 432, pages 895–908, Mars 2005. (Cité en pages 45, 57, 58, 61, 64, 109, 110, 120, 121, 144, 145 et 148.)
- [Dartois *et al.* 2007] E. Dartois, T. R. Geballe, T. Pino, A.-T. Cao, A. Jones, D. Deboffle, V. Guerrini, P. Bréchnignac et L. D’Hendecourt. *IRAS 08572+3915 : constraining the aromatic versus aliphatic content of interstellar HACs*. A&A, vol. 463, pages 635–640, Février 2007. (Cité en pages 46, 47, 54, 55, 58, 61, 108 et 109.)



- [Dartois 2009] E. Dartois. *Interstellar Ices*. In T. Henning, E. Grün, & J. Steinacker, éditeur, Cosmic Dust - Near and Far, volume 414 of Astronomical Society of the Pacific Conference Series, pages 411–+, Décembre 2009. (Cité en page 20.)
- [Dartois 2011] E. Dartois. *Observations of Interstellar Carbon Compounds*. In EAS Publications Series, volume 46 of EAS Publications Series, pages 381–391, Mars 2011. (Cité en page 56.)
- [de Marcellus *et al.* 2011] P. de Marcellus, C. Meinert, M. Nuevo, J.-J. Filippi, G. Danger, D. Deboffe, L. Nahon, L. Le Sergeant d’Hendecourt et U. J. Meierhenrich. *Non-racemic Amino Acid Production by Ultraviolet Irradiation of Achiral Interstellar Ice Analogs with Circularly Polarized Light*. ApJ, vol. 727, pages L27+, Février 2011. (Cité en page 40.)
- [De Mello *et al.* 1997] John C. De Mello, H. Felix Wittmann et Richard H. Friend. An improved experimental determination of external photoluminescence quantum efficiency. Advanced Materials, vol. 9, no. 3, pages 230–232, 1997. (Cité en page 136.)
- [del Burgo *et al.* 2003] C. del Burgo, R. J. Laureijs, P. Ábrahám et C. Kiss. *The far-infrared signature of dust in high-latitude regions*. MNRAS, vol. 346, pages 403–414, Décembre 2003. (Cité en page 40.)
- [Demichelis *et al.* 1995] Francesca Demichelis, Steffen Schreiter et Alberto Tagliaferro. Photoluminescence in a-C :H films. Phys. Rev. B, vol. 51, no. 4, pages 2143–2147, Jan 1995. (Cité en page 154.)
- [Demyk *et al.* 1999] K. Demyk, A. P. Jones, E. Dartois, P. Cox et L. D’Hendecourt. *The chemical composition of the silicate dust around RAFGL7009S and IRAS 19110+1045*. A&A, vol. 349, pages 267–275, Septembre 1999. (Cité en page 21.)
- [Demyk *et al.* 2004] K. Demyk, L. d’Hendecourt, H. Leroux, A. P. Jones et J. Borg. *IR spectroscopic study of olivine, enstatite and diopside irradiated with low energy  $H^+$  and  $He^+$  ions*. A&A, vol. 420, pages 233–243, Juin 2004. (Cité en page 39.)
- [Désert *et al.* 1990] F.-X. Désert, F. Boulanger et J. L. Puget. *Interstellar dust models for extinction and emission*. A&A, vol. 237, pages 215–236, Octobre 1990. (Cité en page 23.)
- [D’Hendecourt & Allamandola 1986] L. B. D’Hendecourt et L. J. Allamandola. *Time dependent chemistry in dense molecular clouds. III - Infrared band cross sections of molecules in the solid state at 10 K*. A&AS, vol. 64, pages 453–467, Juin 1986. (Cité en page 60.)
- [D’Hendecourt *et al.* 1986] L. D’Hendecourt, A. Leger, G. Olofsson et W. Schmidt. The Red Rectangle - A possible case of visible luminescence from polycyclic aromatic hydrocarbons. A&A, vol. 170, pages 91–96, Décembre 1986. (Cité en page 35.)
- [Dischler *et al.* 1983] B. Dischler, A. Bubenzer et P. Koidl. Hard carbon coatings with low optical absorption. Applied Physics Letters, vol. 42, no. 8, pages 636–638, 1983. (Cité en pages 119 et 120.)

- [Dotson *et al.* 2000] J. L. Dotson, J. Davidson, C. D. Dowell, D. A. Schleuning et R. H. Hildebrand. *Far-Infrared Polarimetry of Galactic Clouds from the Kuiper Airborne Observatory*. ApJS, vol. 128, pages 335–370, Mai 2000. (Cité en page 37.)
- [Draine & Li 2007] B. T. Draine et A. Li. *Infrared Emission from Interstellar Dust. IV. The Silicate-Graphite-PAH Model in the Post-Spitzer Era*. ApJ, vol. 657, pages 810–837, Mars 2007. (Cité en page 32.)
- [Draine & Malhotra 1993] B. T. Draine et S. Malhotra. *On graphite and the 2175 Å extinction profile*. ApJ, vol. 414, pages 632–645, Septembre 1993. (Cité en page 26.)
- [Draine 1978] B. T. Draine. *Photoelectric heating of interstellar gas*. ApJS, vol. 36, pages 595–619, Avril 1978. (Cité en page 19.)
- [Draine 1990] B. T. Draine. *Evolution of interstellar dust*. In L. Blitz, éditeur, The Evolution of the Interstellar Medium, volume 12 of Astronomical Society of the Pacific Conference Series, pages 193–205, 1990. (Cité en pages 189, 190, 191 et 194.)
- [Draine 2003] B. T. Draine. *Interstellar Dust Grains*. ARA&A, vol. 41, pages 241–289, 2003. (Cité en pages 27, 28, 32 et 33.)
- [Draine 2009] B. T. Draine. *Interstellar Dust Models and Evolutionary Implications*. In T. Henning, E. Grün, & J. Steinacker, éditeurs, Cosmic Dust - Near and Far, volume 414 of Astronomical Society of the Pacific Conference Series, pages 453–+, Décembre 2009. (Cité en page 39.)
- [Duley & Williams 1981] W. W. Duley et D. A. Williams. *The infrared spectrum of interstellar dust - Surface functional groups on carbon*. MNRAS, vol. 196, pages 269–274, Juillet 1981. (Cité en page 31.)
- [Duley & Williams 1983] W. W. Duley et D. A. Williams. *A 3.4 micron absorption band in amorphous carbon Implications for interstellar dust*. MNRAS, vol. 205, pages 67P–70P, Novembre 1983. (Cité en pages 44 et 45.)
- [Duley & Williams 1986] W. W. Duley et D. A. Williams. *The formation of interstellar H<sub>2</sub> on amorphous silicate grains*. MNRAS, vol. 223, pages 177–182, Novembre 1986. (Cité en page 20.)
- [Duley & Williams 1988] W. W. Duley et D. A. Williams. *Luminescence from interstellar carbons - Evidence for diamond-like dust from extended red and near-infrared emission*. MNRAS, vol. 230, pages 1P–+, Février 1988. (Cité en page 35.)
- [Duley & Williams 1990] W. W. Duley et D. A. Williams. *HAC IS ERE (hydrogenated amorphous carbon interstellar extended red emission)*. MNRAS, vol. 247, pages 647–650, Décembre 1990. (Cité en page 126.)
- [Duley *et al.* 1997] W. W. Duley, S. Seahra et D. A. Williams. *Luminescence from Hydrogenated Amorphous Carbon and Extended Red Emission from Nebulae*. ApJ, vol. 482, pages 866–+, Juin 1997. (Cité en pages 35 et 126.)

- [Duley *et al.* 1998] W. W. Duley, A. D. Scott, S. Seahra et G. Dadswell. *Integrated Absorbances in the 3.4 Micron  $CH_n$  Band in Hydrogenated Amorphous Carbon*. ApJ, vol. 503, pages L183+, Août 1998. (Cité en page 60.)
- [Duley *et al.* 2005] W. W. Duley, V. I. Grishko, J. Kenel, G. Lee-Dadswell et A. Scott. *Laboratory and Theoretical Simulation of 3.4  $\mu m$  Spectra of Hydrocarbons in Interstellar Sources*. ApJ, vol. 626, pages 933–939, Juin 2005. (Cité en page 53.)
- [Duley 1985] W. W. Duley. *Evidence for hydrogenated amorphous carbon in the Red Rectangle*. MNRAS, vol. 215, pages 259–263, Juillet 1985. (Cité en pages 35 et 126.)
- [Duley 1988] W. W. Duley. *Sharp emission lines from diamond dust in the red rectangle?* Ap&SS, vol. 150, pages 387–390, Décembre 1988. (Cité en page 35.)
- [Duley 1993] W. W. Duley. *Infrared Spectra of Interstellar Carbon Solids*. In S. Kwok, editeur, *Astronomical Infrared Spectroscopy : Future Observational Directions*, volume 41 of *Astronomical Society of the Pacific Conference Series*, pages 241–+, Janvier 1993. (Cité en page 21.)
- [Duley 1994] W. W. Duley. *Infrared absorption due to hydrogenated amorphous carbon in the diffuse interstellar medium*. ApJ, vol. 430, pages L133–L135, Août 1994. (Cité en page 64.)
- [Duley 1996] W. W. Duley. *Thermal effects in carbonaceous dust*. MNRAS, vol. 283, pages 343–346, Novembre 1996. (Cité en page 61.)
- [Duley 2000] W. W. Duley. *Chemical Evolution of Carbonaceous Material in Interstellar Clouds*. ApJ, vol. 528, pages 841–848, Janvier 2000. (Cité en page 62.)
- [Duley 2009] W. W. Duley. *Excitation of Extended Red Emission and Near-Infrared Continuum Radiation in the Interstellar Medium*. ApJ, vol. 705, pages 446–453, Novembre 2009. (Cité en page 35.)
- [Dwek *et al.* 1996] E. Dwek, S. M. Foster et O. Vancura. *Cooling, Sputtering, and Infrared Emission from Dust Grains in Fast Nonradiative Shocks*. ApJ, vol. 457, pages 244–+, Janvier 1996. (Cité en page 41.)
- [Dwek *et al.* 1997] E. Dwek, R. G. Arendt, D. J. Fixsen, T. J. Sodroski, N. Odegard, J. L. Weiland, W. T. Reach, M. G. Hauser, T. Kelsall, S. H. Moseley, R. F. Silverberg, R. A. Shafer, J. Ballester, D. Bazell et R. Isaacman. *Detection and Characterization of Cold Interstellar Dust and Polycyclic Aromatic Hydrocarbon Emission, from COBE Observations*. ApJ, vol. 475, pages 565–+, Février 1997. (Cité en pages 18 et 19.)
- [Dwek *et al.* 2008] E. Dwek, R. G. Arendt, P. Bouchet, D. N. Burrows, P. Challis, I. J. Danziger, J. M. De Buizer, R. D. Gehrz, R. P. Kirshner, R. McCray, S. Park, E. F. Polomski et C. E. Woodward. *Infrared and X-Ray Evidence for Circumstellar Grain Destruction by the Blast Wave of Supernova 1987A*. ApJ, vol. 676, pages 1029–1039, Avril 2008. (Cité en page 38.)

- [Ehrenfreund & Charnley 2000] P. Ehrenfreund et S. B. Charnley. *Organic Molecules in the Interstellar Medium, Comets, and Meteorites : A Voyage from Dark Clouds to the Early Earth*. ARA&A, vol. 38, pages 427–483, 2000. (Cité en page 22.)
- [Ehrenfreund et al. 1991] P. Ehrenfreund, F. Robert, L. D’Hendecourt et F. Behar. *Comparison of interstellar and meteoritic organic matter at 3.4 microns*. A&A, vol. 252, pages 712–717, Décembre 1991. (Cité en page 63.)
- [Elmegreen 2007] B. G. Elmegreen. *On the Rapid Collapse and Evolution of Molecular Clouds*. ApJ, vol. 668, pages 1064–1082, Octobre 2007. (Cité en page 194.)
- [Falgarone & Puget 1985] E. Falgarone et J. L. Puget. *A model of clumped molecular clouds. I - Hydrostatic structure of dense cores*. A&A, vol. 142, pages 157–170, Janvier 1985. (Cité en page 19.)
- [Fallon et al. 1993] P. J. Fallon, V. S. Veerasamy, C. A. Davis, J. Robertson, G. A. J. Amaratunga, W. I. Milne et J. Koskinen. *Properties of filtered-ion-beam-deposited diamondlike carbon as a function of ion energy*. Phys. Rev. B, vol. 48, pages 4777–4782, Août 1993. (Cité en pages 120 et 121.)
- [Faustini et al. 2009] F. Faustini, S. Molinari, L. Testi et J. Brand. *Properties of stellar clusters around high-mass young stars*. A&A, vol. 503, pages 801–816, Septembre 2009. (Cité en pages 81 et 82.)
- [Ferrari & Robertson 2000] A. C. Ferrari et J. Robertson. *Interpretation of Raman spectra of disordered and amorphous carbon*. Phys. Rev. B, vol. 61, pages 14095–14107, Mai 2000. (Cité en pages 56, 120 et 121.)
- [Fitzpatrick & Massa 1986] E. L. Fitzpatrick et D. Massa. *An analysis on the shapes of ultraviolet extinction curves. I - The 2175 Å bump*. ApJ, vol. 307, pages 286–294, Août 1986. (Cité en page 26.)
- [Fitzpatrick & Massa 1990] E. L. Fitzpatrick et D. Massa. *An analysis of the shapes of ultraviolet extinction curves. III - an atlas of ultraviolet extinction curves*. ApJS, vol. 72, pages 163–189, Janvier 1990. (Cité en page 25.)
- [Fitzpatrick & Massa 2007] E. L. Fitzpatrick et D. Massa. *An Analysis of the Shapes of Interstellar Extinction Curves. V. The IR through UV Curve Morphology*. ApJ, vol. 663, pages 320–341, Juillet 2007. (Cité en page 26.)
- [Fitzpatrick 1999] E. L. Fitzpatrick. *Correcting for the Effects of Interstellar Extinction*. PASP, vol. 111, pages 63–75, Janvier 1999. (Cité en pages 25 et 27.)
- [Fontani et al. 2006] F. Fontani, P. Caselli, A. Crapsi, R. Cesaroni, S. Molinari, L. Testi et J. Brand. *Searching for massive pre-stellar cores through observations of  $N_2H^+$  and  $N_2D^+$* . A&A, vol. 460, pages 709–720, Décembre 2006. (Cité en page 76.)
- [Fontani et al. 2010] F. Fontani, R. Cesaroni et R. S. Furuya. *Class I and Class II methanol masers in high-mass star-forming regions*. A&A, vol. 517, pages A56+, Juillet 2010. (Cité en pages 76, 80 et 82.)

- [Fujimoto *et al.* 1988] F. Fujimoto, M. Tanaka, Y. Iwata, A. Ootuka, K. Komaki, M. Haba et K. Kobayashi. *Hydrogen release during erd analysis of hydrogen in amorphous carbon films prepared by rf-sputtering*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, vol. 33, pages 792–794, Juin 1988. (Cité en pages 160, 174, 175, 230 et 231.)
- [Furton & Witt 1990] D. G. Furton et A. N. Witt. *The spatial distribution of extended red emission in the planetary nebula NGC 7027*. ApJ, vol. 364, pages L45–L48, Décembre 1990. (Cité en pages 33 et 144.)
- [Furton & Witt 1992] D. G. Furton et A. N. Witt. *Extended red emission from dust in planetary nebulae*. ApJ, vol. 386, pages 587–603, Février 1992. (Cité en pages 33 et 144.)
- [Furton & Witt 1993] D. G. Furton et A. N. Witt. *Activation of extended red emission photoluminescence in carbon solids by exposure to atomic hydrogen and UV radiation*. ApJ, vol. 415, pages L51–L54, Septembre 1993. (Cité en pages 35, 126, 145, 147 et 148.)
- [Furton *et al.* 1999] D. G. Furton, J. W. Laiho et A. N. Witt. *The Amount of Interstellar Carbon Locked in Solid Hydrogenated Amorphous Carbon*. ApJ, vol. 526, pages 752–763, Décembre 1999. (Cité en pages 60, 61, 64, 119, 120, 126, 147 et 148.)
- [Gail & Sedlmayr 1999] H.P. Gail et E. Sedlmayr. *Mineral formation in stellar winds. I. Condensation sequence of silicate and iron grains in stationary oxygen rich outflows*. A&A, vol. 347, pages 594–616, Juillet 1999. (Cité en page 38.)
- [Geballe & van der Veen 1990] T. R. Geballe et W. E. C. J. van der Veen. *IRAS 05341 + 0852 - an evolved star with unique 3-micron emission features*. A&A, vol. 235, pages L9–L12, Août 1990. (Cité en page 48.)
- [Geballe *et al.* 1992] T. R. Geballe, A. G. G. M. Tielens, S. Kwok et B. J. Hrivnak. *Unusual 3 micron emission features in three proto-planetary nebulae*. ApJ, vol. 387, pages L89–L91, Mars 1992. (Cité en page 48.)
- [Geballe *et al.* 2009] T. R. Geballe, R. E. Mason, A. Rodríguez-Ardila et D. J. Axon. *The 3-5  $\mu$ m Spectrum of NGC 1068 at High Angular Resolution : Distribution of Emission and Absorption Features Across the Nuclear Continuum Source*. ApJ, vol. 701, pages 1710–1720, Août 2009. (Cité en pages 52 et 59.)
- [Gillett *et al.* 1973] F. C. Gillett, W. J. Forrest et K. M. Merrill. *8 - 13-micron spectra of NGC 7027, BD +30 3639, and NGC 6572*. ApJ, vol. 183, pages 87–93, Juillet 1973. (Cité en page 31.)
- [Glover & Mac Low 2007] S. C. O. Glover et M.-M. Mac Low. *Simulating the Formation of Molecular Clouds. II. Rapid Formation from Turbulent Initial Conditions*. ApJ, vol. 659, pages 1317–1337, Avril 2007. (Cité en page 194.)
- [Godard & Dartois 2010] M. Godard et E. Dartois. *Photoluminescence of hydrogenated amorphous carbons. Wavelength-dependent yield and implications for the extended red emission*. A&A, vol. 519, page A39, sep 2010. (Cité en pages 64 et 126.)



- [Godard *et al.* 2011a] M. Godard, G. Féraud, M. Chabot, Y. Carpentier, T. Pino, R. Brunetto, J. Duprat, C. Engrand, P. Bréchnignac, L. D'Hendecourt et E. Dartois. *Ion irradiation of carbonaceous interstellar analogues. Effects of cosmic rays on the 3.4  $\mu\text{m}$  interstellar absorption band*. A&A, vol. 529, page A146, Mai 2011. (Cité en page 161.)
- [Godard *et al.* 2011b] M. Godard, T. R. Geballe, E. Dartois et G. M. Muñoz Caro. *The deep 3.4  $\mu\text{m}$  interstellar absorption feature toward the IRAS 18511+0146 cluster*. A&A, vol. Submitted, 2011. (Cité en page 67.)
- [Goldsmith *et al.* 2007] P. F. Goldsmith, D. Li et M. Krčo. *The Transition from Atomic to Molecular Hydrogen in Interstellar Clouds : 21 cm Signature of the Evolution of Cold Atomic Hydrogen in Dense Clouds*. ApJ, vol. 654, pages 273–289, Janvier 2007. (Cité en page 194.)
- [González-Hernández *et al.* 1988] J. González-Hernández, R. Asomoza, A. Reyes-Mena, J. Rickards C, S. S. Chao et D. Pawlik. *Graphitization of amorphous diamondlike carbon films by ion bombardment*. Journal of Vacuum Science Technology, vol. 6, pages 1798–1802, Mai 1988. (Cité en pages 160, 174, 175, 230 et 231.)
- [Gordon *et al.* 1998] K. D. Gordon, A. N. Witt et B. C. Friedmann. *Detection of Extended Red Emission in the Diffuse Interstellar Medium*. ApJ, vol. 498, pages 522–+, Mai 1998. (Cité en pages 33, 35, 148 et 149.)
- [Gosling *et al.* 2009] A. J. Gosling, R. M. Bandyopadhyay et K. M. Blundell. *The complex, variable near-infrared extinction towards the Nuclear Bulge*. MNRAS, vol. 394, pages 2247–2254, Avril 2009. (Cité en page 84.)
- [Goto *et al.* 2003] M. Goto, W. Gaessler, Y. Hayano, M. Iye, Y. Kamata, T. Kanzawa, N. Kobayashi, Y. Minowa, D. J. Saint-Jacques, H. Takami, N. Takato et H. Terada. *Spatially Resolved 3 Micron Spectroscopy of IRAS 22272+5435 : Formation and Evolution of Aliphatic Hydrocarbon Dust in Proto-Planetary Nebulae*. ApJ, vol. 589, pages 419–429, Mai 2003. (Cité en page 48.)
- [Goto *et al.* 2007] M. Goto, S. Kwok, H. Takami, M. Hayashi, W. Gaessler, Y. Hayano, M. Iye, Y. Kamata, T. Kanzawa, N. Kobayashi, Y. Minowa, K. Nedachi, S. Oya, T.-S. Pyo, D. Saint-Jacques, N. Takato, H. Terada et T. Henning. *Diffraction-Limited 3  $\mu\text{m}$  Spectroscopy of IRAS 04296+3429 and IRAS 05341+0852 : Spatial Extent of Hydrocarbon Dust Emission and Dust Evolutionary Sequence*. ApJ, vol. 662, pages 389–394, Juin 2007. (Cité en page 48.)
- [Greenberg *et al.* 1995] J. M. Greenberg, A. Li, C. X. Mendoza-Gomez, W. A. Schutte, P. A. Gerakines et M. de Groot. *Approaching the Interstellar Grain Organic Refractory Component*. ApJ, vol. 455, pages L177–+, Décembre 1995. (Cité en pages 40, 59 et 63.)
- [Groenewegen *et al.* 2008] M. A. T. Groenewegen, A. Udalski et G. Bono. *The distance to the Galactic centre based on Population II Cepheids and RR Lyrae stars*. A&A, vol. 481, pages 441–448, Avril 2008. (Cité en pages 44 et 50.)

- [Guillet *et al.* 2009] V. Guillet, A. P. Jones et G. Pineau Des Forêts. *Shocks in dense clouds. II. Dust destruction and SiO formation in J shocks*. A&A, vol. 497, pages 145–153, Avril 2009. (Cité en page 41.)
- [Guillois *et al.* 1999] O. Guillois, G. Ledoux et C. Reynaud. *Diamond Infrared Emission Bands in Circumstellar Media*. ApJ, vol. 521, pages L133–L36, Août 1999. (Cité en page 22.)
- [Heger 1922] M. L. Heger. *Further study of the sodium lines in class B stars; The spectra of certain class B stars in the regions 5630Å–6680Å and 3280Å–3380Å; Note on the spectrum of [gamma] Cassiopeiae between 5860Å and 6600Å*. Lick Observatory Bulletin, vol. 10, pages 141–148, 1922. (Cité en page 28.)
- [Heiles & Troland 2005] C. Heiles et T. H. Troland. *The Millennium Arecibo 21 Centimeter Absorption-Line Survey. IV. Statistics of Magnetic Field, Column Density, and Turbulence*. ApJ, vol. 624, pages 773–793, Mai 2005. (Cité en page 14.)
- [Heitz *et al.* 1999] T. Heitz, C. Godet, J. E. Bourée, B. Drévillon et J. P. Conde. *Radiative and nonradiative recombination in polymerlike  $a - C : H$  films*. Phys. Rev. B, vol. 60, no. 8, pages 6045–6052, Aug 1999. (Cité en pages 142 et 154.)
- [Hodapp *et al.* 2003] K. W. Hodapp, J. B. Jensen, E. M. Irwin, H. Yamada, R. Chung, K. Fletcher, L. Robertson, J. L. Hora, D. A. Simons, W. Mays, R. Nolan, M. Bec, M. Merrill et A. M. Fowler. *The Gemini Near-Infrared Imager (NIRI)*. PASP, vol. 115, pages 1388–1406, Décembre 2003. (Cité en page 68.)
- [Hollenbach & McKee 1979] D. Hollenbach et C. F. McKee. *Molecule formation and infrared emission in fast interstellar shocks. I Physical processes*. ApJS, vol. 41, pages 555–592, Novembre 1979. (Cité en page 20.)
- [Hollenbach & Salpeter 1971] D. Hollenbach et E. E. Salpeter. *Surface Recombination of Hydrogen Molecules*. ApJ, vol. 163, pages 155–+, Janvier 1971. (Cité en page 20.)
- [Holm *et al.* 1982] R. T. Holm, S. W. McKnight, E. D. Palik et W. Lukosz. *Interference effects in luminescence studies of thin films*. Appl. Opt., vol. 21, pages 2512–2519, Juillet 1982. (Cité en page 132.)
- [Hony 2002] S. Hony. *Infrared light on the composition of the dust surrounding carbon-rich stars*. PhD thesis, Sterrenkundig Instituut "Anton Pannekoek", University of Amsterdam, Kruislaan 403, 1098 SJ, Amsterdam, The Netherlands, Octobre 2002. (Cité en page 38.)
- [Hoppe & Zinner 2000] P. Hoppe et E. Zinner. *Presolar dust grains from meteorites and their stellar sources*. J. Geophys. Res., vol. 105, pages 10371–10386, Mai 2000. (Cité en page 22.)
- [Hörandel 2008] J. R. Hörandel. *Cosmic-ray composition and its relation to shock acceleration by supernova remnants*. Advances in Space Research, vol. 41, pages 442–463, 2008. (Cité en pages 12, 184, 185 et 187.)



- [Hoyle *et al.* 1982] F. Hoyle, N. C. Wickramasinghe, S. Al-Mufti, A. H. Olavesen et D. T. Wickramasinghe. *Infrared spectroscopy over the 2.9-3.9 microns waveband in biochemistry and astronomy*. Ap&SS, vol. 83, pages 405–409, Avril 1982. (Cité en page 62.)
- [Iatì *et al.* 2008] M. A. Iatì, R. Saija, F. Borghese, P. Denti, C. Cecchi-Pestellini et D. A. Williams. *Stratified dust grains in the interstellar medium - I. An accurate computational method for calculating their optical properties*. MNRAS, vol. 384, pages 591–598, Février 2008. (Cité en page 26.)
- [Imanishi *et al.* 1996] M. Imanishi, Y. Sasaki, M. Goto, N. Kobayashi, T. Nagata et T. J. Jones. *Near Infrared Spectroscopy of Highly Reddened Stars in the Galactic Plane*. AJ, vol. 112, pages 235–+, Juillet 1996. (Cité en pages 44, 48 et 49.)
- [Imanishi *et al.* 2006] M. Imanishi, C. C. Dudley et P. R. Maloney. *Infrared 3-4  $\mu$ m Spectroscopic Investigations of a Large Sample of Nearby Ultraluminous Infrared Galaxies*. ApJ, vol. 637, pages 114–137, Janvier 2006. (Cité en page 52.)
- [Imanishi *et al.* 2008] M. Imanishi, T. Nakagawa, Y. Ohyama, M. Shirahata, T. Wada, T. Onaka et N. Oi. *Systematic Infrared 2.5-5  $\mu$ m Spectroscopy of Nearby Ultraluminous Infrared Galaxies with AKARI*. PASJ, vol. 60, pages 489–+, Décembre 2008. (Cité en page 52.)
- [Imanishi 2000a] M. Imanishi. *The 3.4- $\mu$ m absorption feature towards the nucleus of NGC 5506*. MNRAS, vol. 313, pages 165–169, Mars 2000. (Cité en page 52.)
- [Imanishi 2000b] M. Imanishi. *The 3.4- $\mu$ m absorption feature towards three obscured active galactic nuclei*. MNRAS, vol. 319, pages 331–336, Novembre 2000. (Cité en page 52.)
- [Indriolo *et al.* 2007] N. Indriolo, T. R. Geballe, T. Oka et B. J. McCall.  *$H_3^+$  in Diffuse Interstellar Clouds : A Tracer for the Cosmic-Ray Ionization Rate*. ApJ, vol. 671, pages 1736–1747, Décembre 2007. (Cité en pages 187 et 191.)
- [Indriolo *et al.* 2009] N. Indriolo, B. D. Fields et B. J. McCall. *The Implications of a High Cosmic-Ray Ionization Rate in Diffuse Interstellar Clouds*. ApJ, vol. 694, pages 257–267, Mars 2009. (Cité en pages 187 et 192.)
- [Ingram & McCormick 1988] D. C. Ingram et A. W. McCormick. *The effect of MeV ion irradiation on the hydrogen content and resistivity of direct ion beam deposited diamondlike carbon*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, vol. 34, pages 68–73, Juillet 1988. (Cité en pages 160, 174, 175, 230 et 231.)
- [Ishii *et al.* 1998] M. Ishii, T. Nagata, S. Sato, M. Watanabe, Y. Yao et T. J. Jones. *A Survey of Dust Features in the 3 Micron Spectra of YSO Candidates*. AJ, vol. 116, pages 868–880, Août 1998. (Cité en pages 68, 69, 72 et 73.)
- [Ishii *et al.* 2002] M. Ishii, T. Nagata, A. Chrysostomou et J. H. Hough. *3.4 Micron Feature on the Shoulder of Ice-Band Absorptions in Three Luminous Young Stellar Objects : IRAS 18511+0146, IRAS 21413+5442, and IRAS 04579+4703*. AJ, vol. 124, pages 2790–2798, Novembre 2002. (Cité en pages 44, 48, 68, 69, 75 et 84.)

- [Jacob & Unger 1996] W. Jacob et M. Unger. *Experimental determination of the absorption strength of C-H vibrations for infrared analysis of hydrogenated carbon films*. Applied Physics Letters, vol. 68, pages 475–477, Janvier 1996. (Cité en page 60.)
- [Jäger *et al.* 2009] C. Jäger, F. Huisken, H. Mutschke, I. L. Jansa et T. Henning. *Formation of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Carbonaceous Solids in Gas-Phase Condensation Experiments*. ApJ, vol. 696, pages 706–712, Mai 2009. (Cité en page 26.)
- [Jarman *et al.* 1986] R. H. Jarman, G. J. Ray, R. W. Standley et G. W. Zajac. *Determination of bonding in amorphous carbon films - A quantitative comparison of core-electron energy-loss spectroscopy and C-13 nuclear magnetic resonance spectroscopy*. Applied Physics Letters, vol. 49, pages 1065–1067, Octobre 1986. (Cité en pages 120 et 121.)
- [Jenkins 2009] E. B. Jenkins. *A Unified Representation of Gas-Phase Element Depletions in the Interstellar Medium*. ApJ, vol. 700, pages 1299–1348, Août 2009. (Cité en page 18.)
- [Joblin *et al.* 1992] C. Joblin, A. Leger et P. Martin. *Contribution of polycyclic aromatic hydrocarbon molecules to the interstellar extinction curve*. ApJ, vol. 393, pages L79–L82, Juillet 1992. (Cité en page 26.)
- [Joblin *et al.* 1994] C. Joblin, L. D’Hendecourt, A. Leger et D. Defourneau. *Infrared spectroscopy of gas-phase PAH molecules. 1 : Role of the physical environment*. A&A, vol. 281, pages 923–936, Janvier 1994. (Cité en page 32.)
- [Joblin *et al.* 1995] C. Joblin, P. Boissel, A. Leger, L. D’Hendecourt et D. Defourneau. *Infrared spectroscopy of gas-phase PAH molecules. II. Role of the temperature*. A&A, vol. 299, pages 835–+, Juillet 1995. (Cité en page 32.)
- [Joblin *et al.* 1996] C. Joblin, A. G. G. M. Tielens, L. J. Allamandola et T. R. Geballe. *Spatial Variation of the 3.29 and 3.40 Micron Emission Bands within Reflection Nebulae and the Photochemical Evolution of Methylated Polycyclic Aromatic Hydrocarbons*. ApJ, vol. 458, pages 610–+, Février 1996. (Cité en page 48.)
- [Jones & Nuth 2011] A. P. Jones et J. A. Nuth. *Dust destruction in the ISM : a re-evaluation of dust lifetimes*. A&A, vol. 530, page A44, 2011. (Cité en page 39.)
- [Jones *et al.* 1983] T. J. Jones, A. R. Hyland et D. A. Allen. *3 micron spectroscopy of IRS7 towards the Galactic Centre*. MNRAS, vol. 205, pages 187–190, Octobre 1983. (Cité en page 44.)
- [Jones *et al.* 1994] A. P. Jones, A. G. G. M. Tielens, D. J. Hollenbach et C. F. McKee. *Grain destruction in shocks in the interstellar medium*. ApJ, vol. 433, pages 797–810, Octobre 1994. (Cité en pages 39, 41, 189, 190, 191 et 194.)
- [Jones *et al.* 1996] A. P. Jones, A. G. G. M. Tielens et D. J. Hollenbach. *Grain Shattering in Shocks : The Interstellar Grain Size Distribution*. ApJ, vol. 469, pages 740–+, Octobre 1996. (Cité en pages 39 et 41.)
- [Jones *et al.* 1997] A. P. Jones, A. G. G. M. Tielens, D. J. Hollenbach et C. F. McKee. *The propagation and survival of interstellar grains*. In T. J. Bernatowicz & E. Zinner, edi-

- teur, American Institute of Physics Conference Series, volume 402 of American Institute of Physics Conference Series, pages 595–613, Mars 1997. (Cité en page 38.)
- [Jones 1990] A. P. Jones. *Carbon atom clusters in random covalent networks : PAHs as an integral component of interstellar HAC*. MNRAS, vol. 247, pages 305–310, Novembre 1990. (Cité en pages 53 et 56.)
- [Jones 2004] A. P. Jones. *Dust Destruction Processes*. In A. N. Witt, G. C. Clayton, & B. T. Draine, éditeur, Astrophysics of Dust, volume 309 of Astronomical Society of the Pacific Conference Series, pages 347–+, Mai 2004. (Cité en page 40.)
- [Kassavetis *et al.* 2007] S. Kassavetis, P. Patsalas, S. Logothetidis, J. Robertson et S. Kennou. Dispersion relations and optical properties of amorphous carbons. *Diamond and Related Materials*, vol. 16, no. 10, pages 1813–1822, Octobre 2007. (Cité en pages 119, 120, 121 et 122.)
- [Kemper *et al.* 2004] F. Kemper, W. J. Vriend et A. G. G. M. Tielens. *The Absence of Crystalline Silicates in the Diffuse Interstellar Medium*. ApJ, vol. 609, pages 826–837, Juillet 2004. (Cité en page 21.)
- [Kleber 1991] R. Kleber. *Characterization of the  $sp^2$  bonds network in a-C:H layers with nuclear magnetic resonance, electron energy loss spectroscopy and electron spin resonance*. Thin Solid Films, vol. 205, pages 274–278, Décembre 1991. (Cité en pages 120 et 121.)
- [Knacke 1977] R. F. Knacke. *Carbonaceous compounds in interstellar dust*. Nature, vol. 269, pages 132–134, Septembre 1977. (Cité en page 63.)
- [Kokkin *et al.* 2008] D. L. Kokkin, T. P. Troy, M. Nakajima, K. Nauta, T. D. Varberg, G. F. Metha, N. T. Lucas et T. W. Schmidt. *The Optical Spectrum of a Large Isolated Polycyclic Aromatic Hydrocarbon : Hexa-peri-hexabenzocoronene,  $C_{42}H_{18}$* . ApJ, vol. 681, pages L49–L51, Juillet 2008. (Cité en page 28.)
- [Kovalenko 2001] S.A. Kovalenko. Descartes-Snell law of refraction with absorption. *Semiconductor Physics, Quantum Electronics and Optoelectronics*, vol. 4, no. 3, pages 214–218, 07 2001. (Cité en page 223.)
- [Kozasa *et al.* 2009] T. Kozasa, T. Nozawa, N. Tominaga, H. Umeda, K. Maeda et K. Nomoto. *Dust in Supernovae : Formation and Evolution*. In T. Henning, E. Grün, & J. Steinacker, éditeur, Cosmic Dust - Near and Far, volume 414 of Astronomical Society of the Pacific Conference Series, pages 43–+, Décembre 2009. (Cité en page 38.)
- [Kurtz *et al.* 2004] S. Kurtz, P. Hofner et C. V. Álvarez. *A Catalog of  $CH_3OH$   $\gamma_0$ - $\gamma_1$   $A^+$  Maser Sources in Massive Star-forming Regions*. ApJS, vol. 155, pages 149–165, Novembre 2004. (Cité en pages 76 et 80.)
- [Lai *et al.* 2001] S.-P. Lai, R. M. Crutcher, J. M. Girart et R. Rao. *Interferometric Mapping of Magnetic Fields in Star-forming Regions. I. W51 e1/e2 Molecular Cores*. ApJ, vol. 561, pages 864–870, Novembre 2001. (Cité en page 37.)

- [Laikhtman *et al.* 1998] A. Laikhtman, A. Hoffman, R. Kalish, Y. Avigal, A. Breskin, R. Chichik, E. Shefer et Y. Lifshitz. *Absolute quantum photoyield of diamond thin films : Dependence on surface preparation and stability under ambient conditions*. Applied Physics Letters, vol. 73, pages 1433–+, Septembre 1998. (Cité en page 153.)
- [Laureijs *et al.* 1988] R. J. Laureijs, G. Chlewicki et F. O. Clark. *The IRAS 60/100-micron brightness ratio in interstellar clouds*. A&A, vol. 192, pages L13–L16, Mars 1988. (Cité en page 30.)
- [Lazar 1998] G. Lazar. *The Influence of the Magnetron Sputtering Deposition Parameters on Optical Properties of a-C :H Thin Films*. Acta Physica Polonica A, vol. 100, pages 67–+, Juillet 1998. (Cité en pages 119 et 120.)
- [Le Page *et al.* 2003] V. Le Page, T. P. Snow et V. M. Bierbaum. *Hydrogenation and Charge States of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Diffuse Clouds. II. Results*. ApJ, vol. 584, pages 316–330, Février 2003. (Cité en page 32.)
- [Le Petit *et al.* 2006] F. Le Petit, C. Nehmé, J. Le Bourlot et E. Roueff. *A Model for Atomic and Molecular Interstellar Gas : The Meudon PDR Code*. ApJS, vol. 164, pages 506–529, Juin 2006. (Cité en pages 194 et 196.)
- [Ledoux *et al.* 1998] G. Ledoux, M. Ehbrecht, O. Guillois, F. Huisken, B. Kohn, M. A. Laguna, I. Nenner, V. Paillard, R. Papoular, D. Porterat et C. Reynaud. *Silicon as a candidate carrier for ERE*. A&A, vol. 333, pages L39–L42, Mai 1998. (Cité en page 35.)
- [Ledoux *et al.* 2001] G. Ledoux, O. Guillois, F. Huisken, B. Kohn, D. Porterat et C. Reynaud. *Crystalline silicon nanoparticles as carriers for the Extended Red Emission*. A&A, vol. 377, pages 707–720, Octobre 2001. (Cité en pages 35, 126, 144, 145, 147 et 148.)
- [Lee & Wdowiak 1993] W. Lee et T. J. Wdowiak. *Origin of the Hydrocarbon Component of Carbonaceous Chondrites : The Star-Meteorite Connection*. ApJ, vol. 417, pages L49–+, Novembre 1993. (Cité en page 64.)
- [Leger & Puget 1984] A. Leger et J. L. Puget. *Identification of the 'unidentified' IR emission features of interstellar dust ?* A&A, vol. 137, pages L5–L8, Août 1984. (Cité en page 31.)
- [Lequeux & Jourdain de Muizon 1990] J. Lequeux et M. Jourdain de Muizon. *The 3.4 and 12 micrometer absorption bands in the proto-planetary nebula CRL 618*. A&A, vol. 240, pages L19–L22, Décembre 1990. (Cité en page 61.)
- [Lequeux 2002] J. Lequeux. *Le milieu interstellaire*. EDP Sciences, CNRS Editions, astronomy and astrophysics library, berlin : springer, 2002 édition, 2002. (Cité en pages 7 et 13.)
- [Li & Draine 2001] A. Li et B. T. Draine. *On Ultrasmall Silicate Grains in the Diffuse Interstellar Medium*. ApJ, vol. 550, pages L213–L217, Avril 2001. (Cité en page 21.)
- [Li & Greenberg 2002] A. Li et J. M. Greenberg. *Mid-Infrared Spectropolarimetric Constraints on the Core-Mantle Interstellar Dust Model*. ApJ, vol. 577, pages 789–794, Octobre 2002. (Cité en page 59.)

- [Li & Lannin 1990] F. Li et J. S. Lannin. *Radial distribution function of amorphous carbon*. Physical Review Letters, vol. 65, pages 1905–1908, Octobre 1990. (Cité en pages 120 et 121.)
- [Lin & Feldman 1982] S.-H. Lin et B. J. Feldman. *Sidebands in the luminescence spectra of amorphous hydrogenated carbon*. Phys. Rev. Lett., vol. 48, pages 829–831, Mars 1982. (Cité en pages 144 et 145.)
- [Lin & Feldman 1983] Shu-Han Lin et Bernard J. Feldman. Amorphous hydrogenated carbon from the plasma deposition of  $C_2H_2$ ,  $C_2H_4$  or  $CH_4$ . Philosophical Magazine Part B, vol. 47, no. 1, pages 113 – 116, 1983. (Cité en pages 144, 145, 154 et 155.)
- [Lukosz 1981] W. Lukosz. Light emission by multipole sources in thin layers. I. Radiation patterns of electric and magnetic dipoles. Journal of the Optical Society of America (1917-1983), vol. 71, pages 744–+, Juin 1981. (Cité en page 132.)
- [Mallocci *et al.* 2004] G. Mallocci, G. Mulas et P. Benvenuti. Modelling photoluminescence from small particles . I. General formalism and a simple reference implementation. A&A, vol. 420, pages 809–820, Juin 2004. (Cité en pages 136 et 153.)
- [Marée *et al.* 1996] C.H.M. Marée, A.M. Vredenberg et F.H.P.M. Habraken. Mechanism of MeV ion induced hydrogen depletion from organic layers. Materials Chemistry and Physics, vol. 46, no. 2-3, pages 198–205, 1996. (Cité en pages 160, 168, 170, 171, 174, 175, 177, 178, 179, 230 et 231.)
- [Mason *et al.* 2004] R. E. Mason, G. Wright, Y. Pendleton et A. Adamson. *Hydrocarbon Dust Absorption in Seyfert Galaxies and Ultraluminous Infrared Galaxies*. ApJ, vol. 613, pages 770–780, Octobre 2004. (Cité en page 52.)
- [Mason *et al.* 2007] R. E. Mason, G. S. Wright, A. Adamson et Y. Pendleton. *Spectropolarimetry of the  $3.4\ \mu m$  Absorption Feature in NGC 1068*. ApJ, vol. 656, pages 798–804, Février 2007. (Cité en pages 37 et 59.)
- [Mathis *et al.* 1977] J. S. Mathis, W. Rumpl et K. H. Nordsieck. *The size distribution of interstellar grains*. ApJ, vol. 217, pages 425–433, Octobre 1977. (Cité en pages 21 et 23.)
- [Mathis *et al.* 1983] J. S. Mathis, P. G. Mezger et N. Panagia. Interstellar radiation field and dust temperatures in the diffuse interstellar matter and in giant molecular clouds. A&A, vol. 128, pages 212–229, Novembre 1983. (Cité en pages 11, 12, 150, 193 et 194.)
- [Mathis 1998] J. S. Mathis. *The Near-Infrared Interstellar Silicate Bands and Grain Theories*. ApJ, vol. 497, pages 824–+, Avril 1998. (Cité en page 21.)
- [Matsunaga *et al.* 2009] N. Matsunaga, T. Kawadu, S. Nishiyama, T. Nagayama, H. Hatano, M. Tamura, I. S. Glass et T. Nagata. *A near-infrared survey of Miras and the distance to the Galactic Centre*. MNRAS, vol. 399, pages 1709–1729, Novembre 2009. (Cité en pages 44 et 50.)



- [Mattila 1979] K. Mattila. *Optical extinction and surface brightness observations of the dark nebulae LYNDs 134 and LYNDs 1778/1780*. A&A, vol. 78, pages 253–263, Octobre 1979. (Cité en pages 33, 144 et 145.)
- [McCall et al. 2003] B. J. McCall, A. J. Huneycutt, R. J. Saykally, T. R. Geballe, N. Djuric, G. H. Dunn, J. Semaniak, O. Novotny, A. Al-Khalili, A. Ehlerding, F. Hellberg, S. Kalhori, A. Neau, R. Thomas, F. Österdahl et M. Larsson. *An enhanced cosmic-ray flux towards  $\zeta$  Persei inferred from a laboratory study of the  $H_3^+ - e^-$  recombination rate*. Nature, vol. 422, pages 500–502, Avril 2003. (Cité en pages 187 et 191.)
- [McFadzean et al. 1989] A. D. McFadzean, D. C. B. Whittet, M. F. Bode, A. J. Adamson et A. J. Longmore. *Infrared studies of dust and gas towards the Galactic Centre - 3-5 micron spectroscopy*. MNRAS, vol. 241, pages 873–882, Décembre 1989. (Cité en pages 44, 48, 82 et 83.)
- [McKee & Ostriker 1977] C. F. McKee et J. P. Ostriker. *A theory of the interstellar medium - Three components regulated by supernova explosions in an inhomogeneous substrate*. ApJ, vol. 218, pages 148–169, Novembre 1977. (Cité en page 8.)
- [McKee 1989] C. McKee. *Dust Destruction in the Interstellar Medium*. In L. J. Allamandola & A. G. G. M. Tielens, éditeur, *Interstellar Dust*, volume 135 of *IAU Symposium*, page 431, 1989. (Cité en pages 52, 189, 190, 191 et 194.)
- [Mennella et al. 1999] V. Mennella, J. R. Brucato, L. Colangeli et P. Palumbo. *Activation of the 3.4 Micron Band in Carbon Grains by Exposure to Atomic Hydrogen*. ApJ, vol. 524, pages L71–L74, Octobre 1999. (Cité en pages 61, 63 et 193.)
- [Mennella et al. 2001] V. Mennella, G. M. Muñoz Caro, R. Ruiterkamp, W. A. Schutte, J. M. Greenberg, J. R. Brucato et L. Colangeli. *UV photodestruction of CH bonds and the evolution of the 3.4  $\mu$ m feature carrier. II. The case of hydrogenated carbon grains*. A&A, vol. 367, pages 355–361, Février 2001. (Cité en pages 52, 61, 193, 194 et 196.)
- [Mennella et al. 2002] V. Mennella, J. R. Brucato, L. Colangeli et P. Palumbo. *CH Bond Formation in Carbon Grains by Exposure to Atomic Hydrogen : The Evolution of the Carrier of the Interstellar 3.4 Micron Band*. ApJ, vol. 569, pages 531–540, Avril 2002. (Cité en pages 61 et 193.)
- [Mennella et al. 2003] V. Mennella, G. A. Baratta, A. Esposito, G. Ferini et Y. J. Pendleton. *The Effects of Ion Irradiation on the Evolution of the Carrier of the 3.4 Micron Interstellar Absorption Band*. ApJ, vol. 587, pages 727–738, Avril 2003. (Cité en pages 52, 61, 63, 160, 165, 172, 174, 175, 177, 187, 188, 195, 196, 197, 229, 230 et 231.)
- [Mennella 2006] V. Mennella. *Activation Energy of CH Bond Formation in Carbon Grains Irradiated with Hydrogen Atoms*. ApJ, vol. 647, pages L49–L52, Août 2006. (Cité en pages 61, 193, 194 et 195.)
- [Mennella 2008] V. Mennella. *Activation of the 3.47  $\mu$ m Band by H Atom Irradiation of Carbon Grains Covered with a Water Ice Layer at 12 K*. ApJ, vol. 682, pages L101–L104, Août 2008. (Cité en pages 51 et 195.)

- [Mennella 2010] Vito Mennella. *H* Atom Irradiation of Carbon Grains under Simulated Dense Interstellar Medium Conditions : The Evolution of Organics from Diffuse Interstellar Clouds to the Solar System. *ApJ*, vol. 718, no. 2, page 867, 2010. (Cit  en pages 51 et 195.)
- [Meyer *et al.* 1997] D. M. Meyer, J. A. Cardelli et U. J. Sofia. *The Abundance of Interstellar Nitrogen*. *ApJ*, vol. 490, pages L103+, Novembre 1997. (Cit  en page 19.)
- [Meyer *et al.* 1998a] D. M. Meyer, M. Jura et J. A. Cardelli. *The Definitive Abundance of Interstellar Oxygen*. *ApJ*, vol. 493, pages 222+, Janvier 1998. (Cit  en page 19.)
- [Meyer *et al.* 1998b] J.-P. Meyer, L. O. Drury et D. C. Ellison. *A Cosmic-ray Composition Controlled by Volatility and  $a/q$  Ratio. SNR Shock Acceleration of gas and Dust*. *Space Sci. Rev.*, vol. 86, pages 179–201, Juillet 1998. (Cit  en pages 184, 185 et 187.)
- [Micelotta *et al.* 2010] E. R. Micelotta, A. P. Jones et A. G. G. M. Tielens. *Polycyclic aromatic hydrocarbon processing in interstellar shocks*. *A&A*, vol. 510, pages A36+, F vrier 2010. (Cit  en page 41.)
- [Molinari *et al.* 1996] S. Molinari, J. Brand, R. Cesaroni et F. Palla. *A search for precursors of ultracompact HII regions in a sample of luminous IRAS sources. I. Association with ammonia cores*. *A&A*, vol. 308, pages 573–587, Avril 1996. (Cit  en pages 76, 81 et 82.)
- [Molinari *et al.* 2000] S. Molinari, J. Brand, R. Cesaroni et F. Palla. *A search for precursors of Ultracompact Hii regions in a sample of luminous IRAS sources. III. Circumstellar dust properties*. *A&A*, vol. 355, pages 617–628, Mars 2000. (Cit  en page 81.)
- [M ller & Scherzer 1987] W. M ller et B. M. U. Scherzer. *Subsurface molecule formation in hydrogen-implanted graphite*. *Applied Physics Letters*, vol. 50, pages 1870–1872, Juin 1987. (Cit  en page 168.)
- [Molster & Kemper 2005] F. Molster et C. Kemper. *Crystalline Silicates*. *Space Sci. Rev.*, vol. 119, pages 3–28, Ao t 2005. (Cit  en page 38.)
- [Moore & Donn 1982] M. H. Moore et B. Donn. *The Infrared Spectrum of a Laboratory-Synthesized Residue - Implications for the 3.4-MICRON Interstellar Absorption Feature*. *ApJ*, vol. 257, pages L47+, Juin 1982. (Cit  en page 63.)
- [Moskalenko *et al.* 2002] I. V. Moskalenko, A. W. Strong, J. F. Ormes et M. S. Potgieter. *Secondary Antiprotons and Propagation of Cosmic Rays in the Galaxy and Heliosphere*. *ApJ*, vol. 565, pages 280–296, Janvier 2002. (Cit  en pages 14, 186 et 187.)
- [Mouschovias *et al.* 2006] T. C. Mouschovias, K. Tassis et M. W. Kunz. *Observational Constraints on the Ages of Molecular Clouds and the Star Formation Timescale : Ambipolar-Diffusion-controlled or Turbulence-induced Star Formation ?* *ApJ*, vol. 646, pages 1043–1049, Ao t 2006. (Cit  en page 194.)
- [Mu oz Caro *et al.* 2001] G. M. Mu oz Caro, R. Ruiterkamp, W. A. Schutte, J. M. Greenberg et V. Mennella. *UV photodestruction of CH bonds and the evolution of the 3.4  $\mu$  m feature carrier. I. The case of aliphatic and aromatic molecular species*. *A&A*, vol. 367, pages 347–354, F vrier 2001. (Cit  en pages 193 et 195.)



- [Muñoz Caro *et al.* 2004] G. M. Muñoz Caro, U. Meierhenrich, W. A. Schutte, W. H.-P. Thiemann et J. M. Greenberg. *UV-photoprocessing of interstellar ice analogs : Detection of hexamethylenetetramine-based species*. A&A, vol. 413, pages 209–216, Janvier 2004. (Cité en page 40.)
- [Mulas *et al.* 2004] G. Mulas, G. Mallocci et P. Benvenuti. *Modelling photoluminescence from small particles. II. Implications for dust rotation and the Extended Red Emission*. A&A, vol. 420, pages 921–927, Juin 2004. (Cité en pages 146, 153 et 154.)
- [Murakawa *et al.* 2000] K. Murakawa, M. Tamura et T. Nagata. *1-4 Micron Spectrophotometry of Dust in the Taurus Dark Cloud : Water Ice Distribution in Heiles Cloud 2*. ApJS, vol. 128, pages 603–613, Juin 2000. (Cité en pages 30, 194 et 196.)
- [Nishiyama *et al.* 2008] S. Nishiyama, T. Nagata, M. Tamura, R. Kandori, H. Hatano, S. Sato et K. Sugitani. *The Interstellar Extinction Law toward the Galactic Center. II. V, J, H, and K<sub>S</sub> Bands*. ApJ, vol. 680, pages 1174–1179, Juin 2008. (Cité en page 84.)
- [Nollau *et al.* 2000] A. Nollau, M. Hoffmann, K. Floreck, T. Fritz et K. Leo. *A simple measurement of the absolute internal quantum efficiency of thin organic films*. Journal of Applied Physics, vol. 87, pages 7802–7804, Juin 2000. (Cité en page 132.)
- [Ogmen & Duley 1988] M. Ogmen et W. W. Duley. *Laboratory synthesis of hydrogenated amorphous carbon films*. ApJ, vol. 334, pages L117–L120, Novembre 1988. (Cité en page 45.)
- [Padovani *et al.* 2009] M. Padovani, D. Galli et A. E. Glassgold. *Cosmic-ray ionization of molecular clouds*. A&A, vol. 501, pages 619–631, Juillet 2009. (Cité en pages 14 et 186.)
- [Pandian *et al.* 2007] J. D. Pandian, P. F. Goldsmith et A. A. Deshpande. *The Arecibo Methanol Maser Galactic Plane Survey. I. Data*. ApJ, vol. 656, pages 255–274, Février 2007. (Cité en pages 76 et 80.)
- [Patzner 2004] A. B. C. Patzner. *Dust Nucleation in Oxygen Rich Environments*. In A. N. Witt, G. C. Clayton, B. T. Draine, éditeur, *Astrophysics of Dust*, volume 309 of *Astronomical Society of the Pacific Conference Series*, pages 301–+, Mai 2004. (Cité en page 38.)
- [Pawlak *et al.* 1997] F. Pawlak, E. Paumier, M. Toulemonde, C. Dufour, A. Laurent, J. Perriere et J. P. Stoquert. *Amorphous deuterated carbon films irradiated by swift heavy ions : Infrared measurements and ion beam analysis*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, vol. 131, pages 135–140, Août 1997. (Cité en pages 160, 172, 174, 175, 229, 230 et 231.)
- [Peeters *et al.* 2002] E. Peeters, S. Hony, C. Van Kerckhoven, A. G. G. M. Tielens, L. J. Allamandola, D. M. Hudgins et C. W. Bauschlicher. *The rich 6 to 9  $\mu$ m spectrum of interstellar PAHs*. A&A, vol. 390, pages 1089–1113, Août 2002. (Cité en page 47.)
- [Pendleton & Allamandola 2002] Y. J. Pendleton et L. J. Allamandola. *The Organic Refractory Material in the Diffuse Interstellar Medium : Mid-Infrared Spectroscopic Constraints*. ApJS, vol. 138, pages 75–98, Janvier 2002. (Cité en pages 46, 47, 55, 57, 58, 62 et 63.)

- [Pendleton *et al.* 1994] Y. J. Pendleton, S. A. Sandford, L. J. Allamandola, A. G. G. M. Tielens et K. Sellgren. *Near-infrared absorption spectroscopy of interstellar hydrocarbon grains*. ApJ, vol. 437, pages 683–696, Décembre 1994. (Cité en pages 44, 48, 49, 53, 54, 60, 62, 63, 68, 82 et 83.)
- [Perrin & Sivan 1992] J.-M. Perrin et J.-P. Sivan. *Discovery of a red luminescence band in the spectrum of the Orion Nebula*. A&A, vol. 255, pages 271–280, Février 1992. (Cité en pages 33 et 144.)
- [Perrin *et al.* 1995] J.-M. Perrin, S. Darbon et J.-P. Sivan. *Observation of extended red emission (ERE) in the halo of M82*. A&A, vol. 304, pages L21+, Décembre 1995. (Cité en pages 33 et 144.)
- [Pierini *et al.* 2002] D. Pierini, A. Majeed, T. A. Boroson et A. N. Witt. *Extended Red Emission in the Evil Eye Galaxy (NGC 4826)*. ApJ, vol. 569, pages 184–203, Avril 2002. (Cité en pages 33 et 144.)
- [Pino *et al.* 2008] T. Pino, E. Dartois, A.-T. Cao, Y. Carpentier, T. Chamaillé, R. Vasquez, A. P. Jones, L. D’Hendecourt et P. Bréchnignac. *The 6.2  $\mu$ m band position in laboratory and astrophysical spectra : a tracer of the aliphatic to aromatic evolution of interstellar carbonaceous dust*. A&A, vol. 490, pages 665–672, Novembre 2008. (Cité en page 161.)
- [Pirali *et al.* 2007] O. Pirali, M. Vervloet, J. E. Dahl, R. M. K. Carlson, A. G. G. M. Tielens et J. Oomens. *Infrared Spectroscopy of Diamondoid Molecules : New Insights into the Presence of Nanodiamonds in the Interstellar Medium*. ApJ, vol. 661, pages 919–925, Juin 2007. (Cité en page 22.)
- [Pócsik & Koós 2001] I. Pócsik et M. Koós. *Consequences of size-effect and spectral inhomogeneity on Raman and photoluminescence spectra of a-C :H*. Diamond and Related Materials, vol. 10, no. 2, pages 161 – 167, 2001. (Cité en page 150.)
- [Posch *et al.* 2002] T. Posch, F. Kerschbaum, H. Mutschke, J. Dorschner et C. Jäger. *On the origin of the 19.5  $\mu$ m feature. Identifying circumstellar Mg-Fe-oxides*. A&A, vol. 393, pages L7–L10, Octobre 2002. (Cité en page 38.)
- [Prasad & Tarafdar 1983] S. S. Prasad et S. P. Tarafdar. *UV radiation field inside dense clouds - Its possible existence and chemical implications*. ApJ, vol. 267, pages 603–609, Avril 1983. (Cité en pages 14, 194 et 196.)
- [Prawer *et al.* 1987] S. Prawer, R. Kalish, M. Adel et V. Richter. *Effects of heavy ion irradiation on amorphous hydrogenated (diamondlike) carbon films*. Journal of Applied Physics, vol. 61, pages 4492–4500, Mai 1987. (Cité en pages 160, 174, 175, 230 et 231.)
- [Rachford *et al.* 2002] B. L. Rachford, T. P. Snow, J. Tumlinson, J. M. Shull, W. P. Blair, R. Ferlet, S. D. Friedman, C. Gry, E. B. Jenkins, D. C. Morton, B. D. Savage, P. Sonnentrucker, A. Vidal-Madjar, D. E. Welty et D. G. York. *A Far Ultraviolet Spectroscopic Explorer Survey of Interstellar Molecular Hydrogen in Translucent Clouds*. ApJ, vol. 577, pages 221–244, Septembre 2002. (Cité en page 25.)

- [Rapacioli *et al.* 2005] M. Rapacioli, C. Joblin et P. Boissel. *Spectroscopy of polycyclic aromatic hydrocarbons and very small grains in photodissociation regions*. A&A, vol. 429, pages 193–204, Janvier 2005. (Cité en page 32.)
- [Rawlings *et al.* 2003] M. G. Rawlings, A. J. Adamson et D. C. B. Whittet. *Infrared and visual interstellar absorption features towards heavily reddened field stars*. MNRAS, vol. 341, pages 1121–1140, Juin 2003. (Cité en pages 44, 48, 49, 82 et 83.)
- [Reese & Sitko 1996] M. D. Reese et M. L. Sitko. *Ultraviolet and Visible Spectropolarimetry of the Red Rectangle and HD 44179*. ApJ, vol. 467, pages L105+, Août 1996. (Cité en page 150.)
- [Rhee *et al.* 2007] Y. M. Rhee, T. J. Lee, M. S. Gudipati, L. J. Allamandola et M. Head-Gordon. *Charged polycyclic aromatic hydrocarbon clusters and the galactic extended red emission*. Proceedings of the National Academy of Sciences, vol. 104, no. 13, pages 5274–5278, mar 2007. (Cité en page 35.)
- [Rieke & Lebofsky 1985] G. H. Rieke et M. J. Lebofsky. *The interstellar extinction law from 1 to 13 microns*. ApJ, vol. 288, pages 618–621, Janvier 1985. (Cité en pages 26, 78, 79 et 84.)
- [Rieke *et al.* 1989] G. H. Rieke, M. J. Rieke et A. E. Paul. *Origin of the excitation of the galactic center*. ApJ, vol. 336, pages 752–761, Janvier 1989. (Cité en page 84.)
- [Risaliti *et al.* 2003] G. Risaliti, R. Maiolino, A. Marconi, L. Bassani, S. Berta, V. Braitto, R. Della Ceca, A. Franceschini et M. Salvati. *Revealing the Active Galactic Nucleus in the Superantennae through L-Band Spectroscopy*. ApJ, vol. 595, pages L17–L20, Septembre 2003. (Cité en page 52.)
- [Ristein *et al.* 1998] J. Ristein, R. T. Stief, L. Ley et W. Beyer. *A comparative analysis of a-C:H by infrared spectroscopy and mass selected thermal effusion*. Journal of Applied Physics, vol. 84, pages 3836–3847, Octobre 1998. (Cité en pages 54 et 109.)
- [Robertson 1986] J. Robertson. *Amorphous carbon*. Advances in Physics, vol. 35, pages 317–374, Novembre 1986. (Cité en pages 21 et 120.)
- [Robertson 1996] J. Robertson. *Recombination and photoluminescence mechanism in hydrogenated amorphous carbon*. Phys. Rev. B, vol. 53, no. 24, pages 16302–16305, Jun 1996. (Cité en pages 120, 121, 139 et 154.)
- [Rodnyi 1997] PA Rodnyi. *Physical processes in inorganic scintillators*. CRC Press, may 1997. (Cité en page 136.)
- [Rusli *et al.* 1996] R. Rusli, J. Robertson et G. A. J. Amaratunga. *Photoluminescence behavior of hydrogenated amorphous carbon*. Journal of Applied Physics, vol. 80, pages 2998–3003, Septembre 1996. (Cité en pages 96, 126, 138, 139, 140, 144, 145 et 150.)
- [Sajina *et al.* 2009] A. Sajina, H. Spoon, L. Yan, M. Imanishi, D. Fadda et M. Elitzur. *Detections of Water Ice, Hydrocarbons, and 3.3  $\mu$ m PAH in  $z \sim 2$  ULIRGs*. ApJ, vol. 703, pages 270–284, Septembre 2009. (Cité en page 52.)

- [Sakata *et al.* 1992] A. Sakata, S. Wada, T. Narisawa, Y. Asano, Y. Iijima, T. Onaka et A. T. Tokunaga. *Quenched carbonaceous composite - Fluorescence spectrum compared to the extended red emission observed in reflection nebulae*. ApJ, vol. 393, pages L83–L86, Juillet 1992. (Cité en pages 35, 64 et 151.)
- [Sandford *et al.* 1991] S. A. Sandford, L. J. Allamandola, A. G. G. M. Tielens, K. Sellgren, M. Tapia et Y. Pendleton. *The interstellar C-H stretching band near 3.4 microns - Constraints on the composition of organic material in the diffuse interstellar medium*. ApJ, vol. 371, pages 607–620, Avril 1991. (Cité en pages 44, 46, 48, 53, 60, 82 et 83.)
- [Sandford *et al.* 1995] S. A. Sandford, Y. J. Pendleton et L. J. Allamandola. *The Galactic Distribution of Aliphatic Hydrocarbons in the Diffuse Interstellar Medium*. ApJ, vol. 440, pages 697–+, Février 1995. (Cité en pages 49, 59 et 83.)
- [Savage & Mathis 1979] B. D. Savage et J. S. Mathis. *Observed properties of interstellar dust*. ARA&A, vol. 17, pages 73–111, 1979. (Cité en page 25.)
- [Schmidt *et al.* 1980] G. D. Schmidt, M. Cohen et B. Margon. *Discovery of optical molecular emission from the bipolar nebula surrounding HD 44179*. ApJ, vol. 239, pages L133–L138, Août 1980. (Cité en pages 33, 34 et 150.)
- [Schnaiter *et al.* 1998] M. Schnaiter, H. Mutschke, J. Dorschner, T. Henning et F. Salama. *Matrix-isolated Nano-sized Carbon Grains as an Analog for the 217.5 Nanometer Feature Carrier*. ApJ, vol. 498, pages 486–+, Mai 1998. (Cité en page 63.)
- [Schödel *et al.* 2010] R. Schödel, F. Najarro, K. Muzic et A. Eckart. *Peering through the veil : near-infrared photometry and extinction for the Galactic nuclear star cluster. Accurate near infrared H, Ks, and L' photometry and the near-infrared extinction-law toward the central parsec of the Galaxy*. A&A, vol. 511, pages A18+, Février 2010. (Cité en page 84.)
- [Schütte *et al.* 1993] Susanne Schütte, Stephan Will, Helmut Mell et Walther Fuhs. *Electronic properties of amorphous carbon (a-C :H). Diamond and Related Materials*, vol. 2, no. 10, pages 1360 – 1364, 1993. (Cité en pages 139 et 140.)
- [Schutte *et al.* 1998] W. A. Schutte, K. A. van der Hucht, D. C. B. Whittet, A. C. A. Boogert, A. G. G. M. Tielens, P. W. Morris, J. M. Greenberg, P. M. Williams, E. F. van Dishoeck, J. E. Chiar et T. de Graauw. *ISO-SWS observations of infrared absorption bands of the diffuse interstellar medium : The 6.2 MU M feature of aromatic compounds*. A&A, vol. 337, pages 261–274, Septembre 1998. (Cité en page 30.)
- [Schwarz-Selinger *et al.* 1999] T. Schwarz-Selinger, A. von Keudell et W. Jacob. *Plasma chemical vapor deposition of hydrocarbon films : The influence of hydrocarbon source gas on the film properties*. Journal of Applied Physics, vol. 86, pages 3988–3996, Octobre 1999. (Cité en pages 91, 96, 121 et 122.)
- [Scott & Duley 1996] A. Scott et W. W. Duley. *The Decomposition of Hydrogenated Amorphous Carbon : A Connection with Polycyclic Aromatic Hydrocarbon Molecules*. ApJ, vol. 472, pages L123+, Décembre 1996. (Cité en pages 61, 62 et 64.)

- [Scott 1997] A. D. Scott. *Laboratory Formation and Analysis of the Materials Comprising Interstellar Dust*. PhD thesis, UNIVERSITY OF WATERLOO (CANADA, 1997. (Cité en page 64.)
- [Seahra & Duley 1999] S. S. Seahra et W. W. Duley. *Extended Red Emission from Carbon Clusters in Interstellar Clouds*. *ApJ*, vol. 520, pages 719–723, Août 1999. (Cité en pages 35 et 126.)
- [Serkowski *et al.* 1975] K. Serkowski, D. S. Mathewson et V. L. Ford. *Wavelength dependence of interstellar polarization and ratio of total to selective extinction*. *ApJ*, vol. 196, pages 261–290, Février 1975. (Cité en page 37.)
- [Serra Díaz-Cano & Jones 2008] L. Serra Díaz-Cano et A. P. Jones. *Carbonaceous dust in interstellar shock waves : hydrogenated amorphous carbon (a-C:H) vs. graphite*. *A&A*, vol. 492, pages 127–133, Décembre 2008. (Cité en page 41.)
- [Seth & Babu 1993] J. Seth et S. V. Babu. *Effects of inert gas dilution of 1,3 butadiene on plasma deposition of a-C:H films*. *Journal of Applied Physics*, vol. 73, pages 2496–2504, Mars 1993. (Cité en page 92.)
- [Shen *et al.* 2004] C. J. Shen, J. M. Greenberg, W. A. Schutte et E. F. van Dishoeck. *Cosmic ray induced explosive chemical desorption in dense clouds*. *A&A*, vol. 415, pages 203–215, Février 2004. (Cité en pages 185, 186, 187 et 194.)
- [Silva *et al.* 1996] S. R. P. Silva, J. Robertson, Rusli, Gehan A. J. Amaratunga et J. Schwan. *Structure and luminescence properties of an amorphous hydrogenated carbon*. *Philosophical Magazine Part B*, vol. 74, no. 4, pages 369–386, October 1996. (Cité en pages 103, 119, 120, 139 et 140.)
- [Simpson 1983] J. A. Simpson. *Elemental and Isotopic Composition of the Galactic Cosmic Rays*. *Annual Review of Nuclear and Particle Science*, vol. 33, pages 323–382, 1983. (Cité en pages 184, 185 et 187.)
- [Sitko 1983] M. L. Sitko. *Molecular emission bands in the ultraviolet spectrum of the red rectangle star HD 44179*. *ApJ*, vol. 265, pages 848–854, Février 1983. (Cité en page 150.)
- [Sivan & Perrin 1993] J.-P. Sivan et J.-M. Perrin. *Scattering and luminescence in the Bubble Nebula*. *ApJ*, vol. 404, pages 258–263, Février 1993. (Cité en pages 33 et 144.)
- [Smith & Witt 2002] T. L. Smith et A. N. Witt. *The Photophysics of the Carrier of Extended Red Emission*. *ApJ*, vol. 565, pages 304–318, Janvier 2002. (Cité en pages 33, 35, 36, 147, 148, 149, 150 et 151.)
- [Smith *et al.* 1993] R. G. Smith, K. Sellgren et T. Y. Brooke. *Grain Mantles in the Taurus Dark Cloud*. *MNRAS*, vol. 263, pages 749–+, Août 1993. (Cité en pages 194 et 196.)
- [Snow & Destree 2011] T. P. Snow et J. D. Destree. *The Diffuse Interstellar Bands in History and in the UV*. In *EAS Publications Series*, volume 46 of *EAS Publications Series*, pages 341–347, Mars 2011. (Cité en page 28.)



- [Sofia & Meyer 2001] U. J. Sofia et D. M. Meyer. *Interstellar Abundance Standards Revisited*. ApJ, vol. 554, pages L221–L224, Juin 2001. (Cité en pages 18, 19, 60 et 61.)
- [Sofia *et al.* 2011] U. J. Sofia, V. S. Parvathi, B. R. S. Babu et J. Murthy. *Determining Interstellar Carbon Abundances from Strong-line Transitions*. AJ, vol. 141, pages 22–+, Janvier 2011. (Cité en pages 18 et 19.)
- [Sogawa & Kozasa 1999] H. Sogawa et T. Kozasa. *On the Origin of Crystalline Silicate in Circumstellar Envelopes of Oxygen-rich Asymptotic Giant Branch Stars*. ApJ, vol. 516, pages L33–L36, Mai 1999. (Cité en page 38.)
- [Soifer *et al.* 1976] B. T. Soifer, R. W. Russell et K. M. Merrill. *2-4 micron spectrophotometric observations of the galactic center*. ApJ, vol. 207, pages L83–L85, Juillet 1976. (Cité en page 44.)
- [Solomon & Rivolo 1989] P. M. Solomon et A. R. Rivolo. *A face-on view of the first galactic quadrant in molecular clouds*. ApJ, vol. 339, pages 919–925, Avril 1989. (Cité en page 77.)
- [Som *et al.* 1999] T. Som, S. Kumar et V. N. Kulkarni. *He<sup>+</sup> ion induced hydrogen depletion from a-C:H films*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, vol. 156, pages 212–216, 1999. (Cité en pages 160, 171, 174, 175, 230 et 231.)
- [Som *et al.* 2005] T. Som, M. Malhotra, V. N. Kulkarni et S. Kumar. *Correlation of hydrogen content with the microstructure of a-C:H films*. Physica B Condensed Matter, vol. 355, pages 72–77, Janvier 2005. (Cité en pages 160, 174, 175, 230 et 231.)
- [Sorrell 1990] W. H. Sorrell. *The 2175-Å feature from irradiated graphitic particles*. MNRAS, vol. 243, pages 570–587, Avril 1990. (Cité en pages 193 et 194.)
- [Spitzer & Tomasko 1968] L. Spitzer Jr. et M. G. Tomasko. *Heating of H II Regions by Energetic Particles*. ApJ, vol. 152, pages 971–+, Juin 1968. (Cité en pages 186 et 187.)
- [Spoon *et al.* 2004] H. W. W. Spoon, L. Armus, J. Cami, A. G. G. M. Tielens, J. E. Chiar, E. Peeters, J. V. Keane, V. Charmandaris, P. N. Appleton, H. I. Teplitz et M. J. Burgdorf. *Fire and Ice : Spitzer Infrared Spectrograph (IRS) Mid-Infrared Spectroscopy of IRAS F00183-7111*. ApJS, vol. 154, pages 184–187, Septembre 2004. (Cité en pages 47 et 52.)
- [Steglich *et al.* 2010] M. Steglich, C. Jäger, G. Rouillé, F. Huisken, H. Mutschke et T. Henning. *Electronic Spectroscopy of Medium-sized Polycyclic Aromatic Hydrocarbons : Implications for the Carriers of the 2175 Å UV Bump*. ApJ, vol. 712, pages L16–L20, Mars 2010. (Cité en page 26.)
- [Stepnik *et al.* 2003] B. Stepnik, A. Abergel, J.-P. Bernard, F. Boulanger, L. Cambrésy, M. Giard, A. P. Jones, G. Lagache, J.-M. Lamarre, C. Meny, F. Pajot, F. Le Peintre, I. Ristorcelli, G. Serra et J.-P. Torre. *Evolution of dust properties in an interstellar filament*. A&A, vol. 398, pages 551–563, Février 2003. (Cité en page 40.)

- [Strazzulla *et al.* 1995] G. Strazzulla, G. A. Baratta et F. Spinella. *Production and evolution of carbonaceous material by ion irradiation in space*. Advances in Space Research, vol. 15, pages 385–399, 1995. (Cité en page 63.)
- [Strazzulla *et al.* 2001] G. Strazzulla, G. A. Baratta, G. Leto, M. E. Palumbo et F. Spinella. *Researches of exo/astrobiological interest at the Laboratory of Experimental Astrophysics in Catania (Italy)*. In P. Ehrenfreund, O. Angerer, & B. Battrock, éditeur, Exo-/Astro-Biology, volume 496 of ESA Special Publication, pages 129–132, Août 2001. (Cité en page 163.)
- [Sugerman *et al.* 2006] B. E. K. Sugerman, B. Ercolano, M. J. Barlow, A. G. G. M. Tielens, G. C. Clayton, A. A. Zijlstra, M. Meixner, A. Speck, T. M. Gledhill, N. Panagia, M. Cohen, K. D. Gordon, M. Meyer, J. Fabbri, J. E. Bowey, D. L. Welch, M. W. Regan et R. C. Kennicutt. *Massive-Star Supernovae as Major Dust Factories*. Science, vol. 313, pages 196–200, Juillet 2006. (Cité en page 38.)
- [Szomoru & Guhathakurta 1998] A. Szomoru et P. Guhathakurta. Optical Spectroscopy of Galactic Cirrus Clouds : Extended Red Emission in the Diffuse Interstellar Medium. ApJ, vol. 494, pages L93+, Février 1998. (Cité en pages 33, 34, 144, 145, 148 et 149.)
- [Tamor & Vassell 1994] M. A. Tamor et W. C. Vassell. Raman “fingerprinting” of amorphous carbon films. Journal of Applied Physics, vol. 76, no. 6, pages 3823–3830, 1994. (Cité en pages 120 et 121.)
- [Tapia *et al.* 1989] M. Tapia, P. Persi, M. Ferrari-Toniolo et M. Roth. *Three-micron spectroscopy of three highly reddened field stars*. A&A, vol. 225, pages 488–496, Novembre 1989. (Cité en page 44.)
- [Tassis & Mouschovias 2004] K. Tassis et T. C. Mouschovias. *Ambipolar-Diffusion Timescale, Star Formation Timescale, and the Ages of Molecular Clouds : Is There a Discrepancy ?* ApJ, vol. 616, pages 283–287, Novembre 2004. (Cité en page 194.)
- [Tielens *et al.* 1996] A. G. G. M. Tielens, D. H. Wooden, L. J. Allamandola, J. Bregman et F. C. Witteborn. *The Infrared Spectrum of the Galactic Center and the Composition of Interstellar Dust*. ApJ, vol. 461, pages 210–+, Avril 1996. (Cité en page 47.)
- [Tielens 2005] A. G. G. M. Tielens. The Physics and Chemistry of the Interstellar Medium. Cambridge University Press, Septembre 2005. (Cité en pages 7 et 29.)
- [Tielens 2008] A. G. G. M. Tielens. *Interstellar Polycyclic Aromatic Hydrocarbon Molecules*. ARA&A, vol. 46, pages 289–337, Septembre 2008. (Cité en page 22.)
- [Tokunaga 2000] A. T. Tokunaga. Infrared Astronomy, page 143. New York : AIP Press ; Springer, 4th édition, 2000. (Cité en page 71.)
- [Turlo & Rozwadowskajasniewska 1987] J. Turlo et K. Rozwadowskajasniewska. *Optical and electrical energy gap investigations in low-temperature glassy carbon layers*. Journal of Non Crystalline Solids, vol. 90, pages 641–644, Février 1987. (Cité en page 120.)



- [Verstraete *et al.* 2001] L. Verstraete, C. Pech, C. Moutou, K. Sellgren, C. M. Wright, M. Giard, A. Léger, R. Timmermann et S. Drapatz. *The Aromatic Infrared Bands as seen by ISO-SWS : Probing the PAH model*. A&A, vol. 372, pages 981–997, Juin 2001. (Cité en page 32.)
- [Vig *et al.* 2007] S. Vig, L. Testi, M. Walmsley, S. Molinari, S. Carey et A. Noriega-Crespo. *IRAS 18511+0146 : a proto Herbig Ae/Be cluster ?* A&A, vol. 470, pages 977–989, Août 2007. (Cité en pages 68, 69, 70, 72, 73 et 81.)
- [Vijh *et al.* 2005] U. P. Vijh, A. N. Witt et K. D. Gordon. *Blue Luminescence and the Presence of Small Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in the Interstellar Medium*. ApJ, vol. 633, pages 262–271, Novembre 2005. (Cité en page 35.)
- [Vladimirov *et al.* 2011] A.E. Vladimirov, S.W. Digel, G. Jóhannesson, P.F. Michelson, I.V. Moskalenko, P.L. Nolan, E. Orlando, T.A. Porter et A.W. Strong. *GALPROP WebRun : An internet-based service for calculating galactic cosmic ray propagation and associated photon emissions*. Computer Physics Communications, vol. 182, no. 5, pages 1156 – 1161, 2011. (Cité en pages 184 et 185.)
- [Wada *et al.* 2009] S. Wada, Y. Mizutani, T. Narisawa et A. T. Tokunaga. *On the Carrier of the Extended Red Emission and Blue Luminescence*. ApJ, vol. 690, pages 111–119, Janvier 2009. (Cité en pages 35 et 64.)
- [Wagner & Lautenschlager 1986] J. Wagner et P. Lautenschlager. *Hard amorphous carbon studied by ellipsometry and photoluminescence*. Journal of Applied Physics, vol. 59, pages 2044–2047, Mars 1986. (Cité en pages 119, 120, 138, 139, 144 et 145.)
- [Watanabe *et al.* 1982] I. Watanabe, S. Hasegawa et Y. Kurata. *Photoluminescence of Hydrogenated Amorphous Carbon Films*. Japanese Journal of Applied Physics, vol. 21, pages 856–+, Juin 1982. (Cité en pages 138, 139, 144, 145, 154 et 155.)
- [Waters 2004] L. B. F. M. Waters. *Dust in evolved stars*. In A. N. Witt, G. C. Clayton, & B. T. Draine, éditeur, *Astrophysics of Dust*, volume 309 of *Astronomical Society of the Pacific Conference Series*, pages 229–+, Mai 2004. (Cité en page 38.)
- [Watkin *et al.* 1991] S. Watkin, T. M. Gledhill et S. M. Scarrott. *Further evidence for localized extended red emission in NGC 7023*. MNRAS, vol. 252, pages 229–233, Septembre 1991. (Cité en page 35.)
- [Watt & Mundy 1999] S. Watt et L. G. Mundy. *Molecular Environments of Young Massive Stars : G34.26+0.15, G11.94-0.62, G33.92+0.11, and IRAS 18511+0146*. ApJS, vol. 125, pages 143–160, Novembre 1999. (Cité en page 76.)
- [Wdowiak *et al.* 1988] T. J. Wdowiak, G. C. Flickinger et J. R. Cronin. *Insoluble organic material of the Orgueil carbonaceous chondrite and the unidentified infrared bands*. ApJ, vol. 328, pages L75–L79, Mai 1988. (Cité en page 63.)
- [Webber & Yushak 1983] W. R. Webber et S. M. Yushak. *A measurement of the energy spectra and relative abundance of the cosmic-ray H and He isotopes over a broad energy range*. ApJ, vol. 275, pages 391–404, Décembre 1983. (Cité en pages 184, 185 et 192.)

- [Webber 1998] W. R. Webber. *A New Estimate of the Local Interstellar Energy Density and Ionization Rate of Galactic Cosmic Rays*. ApJ, vol. 506, pages 329–334, Octobre 1998. (Cité en pages 14, 186, 187 et 191.)
- [Weber & Monchamp 1973] M. J. Weber et R. R. Monchamp. *Luminescence of Bi<sub>4</sub>Ge<sub>3</sub>O<sub>12</sub> : Spectral and decay properties*. Journal of Applied Physics, vol. 44, no. 12, pages 5495–5499, Décembre 1973. (Cité en pages 136 et 137.)
- [Webster 1993] A. Webster. *The Extended Red Emission and the Fluorescence of C<sub>60</sub>*. MNRAS, vol. 264, pages L1+, Septembre 1993. (Cité en page 35.)
- [Whittet *et al.* 1988] D. C. B. Whittet, M. F. Bode, A. J. Longmore, A. J. Adamson, A. D. McFadzean, D. K. Aitken et P. F. Roche. *Infrared spectroscopy of dust in the Taurus dark clouds - Ice and silicates*. MNRAS, vol. 233, pages 321–336, Juillet 1988. (Cité en pages 30, 194 et 196.)
- [Whittet *et al.* 1993] D. C. B. Whittet, P. G. Martin, E. L. Fitzpatrick et D. Massa. *Interstellar extinction in the infrared - The molecular cloud toward HD 62542*. ApJ, vol. 408, pages 573–578, Mai 1993. (Cité en page 26.)
- [Whittet *et al.* 1997] D. C. B. Whittet, A. C. A. Boogert, P. A. Gerakines, W. Schutte, A. G. G. M. Tielens, T. de Graauw, T. Prusti, E. F. van Dishoeck, P. R. Wesselius et C. M. Wright. *Infrared Spectroscopy of Dust in the Diffuse Interstellar Medium toward Cygnus OB2 No. 12*. ApJ, vol. 490, pages 729–+, Décembre 1997. (Cité en pages 47, 48 et 84.)
- [Whittet 1992] D. C. B. Whittet. *Dust in the galactic environment*. Institute of Physics Publishing, 1992. (Cité en pages 50, 78 et 81.)
- [Wickramasinghe & Allen 1980] D. T. Wickramasinghe et D. A. Allen. *The 3.4-micron interstellar absorption feature*. Nature, vol. 287, pages 518–+, Octobre 1980. (Cité en page 44.)
- [Wickramasinghe & Allen 1983] D. T. Wickramasinghe et D. A. Allen. *Three components of 3-4 micron absorption bands*. Ap&SS, vol. 97, pages 369–378, Décembre 1983. (Cité en page 44.)
- [Wild & Koidl 1987] C. Wild et P. Koidl. *Thermal gas effusion from hydrogenated amorphous carbon films*. Applied Physics Letters, vol. 51, pages 1506–1508, Novembre 1987. (Cité en page 168.)
- [Willner *et al.* 1979] S. P. Willner, R. W. Russell, R. C. Puetter, B. T. Soifer et P. M. Harvey. *The 4 to 8 micron spectrum of the galactic center*. ApJ, vol. 229, pages L65–L68, Avril 1979. (Cité en page 44.)
- [Witt & Boroson 1990] A. N. Witt et Todd. A. Boroson. *Spectroscopy of extended red emission in reflection nebulae*. ApJ, vol. 355, pages 182–189, Mai 1990. (Cité en pages 33, 34, 35, 142, 144 et 145.)

- [Witt & Schild 1985] A. N. Witt et R. E. Schild. *Colors of reflection nebulae. II - The excitation of extended red emission*. ApJ, vol. 294, pages 225–230, Juillet 1985. (Cité en pages 33 et 150.)
- [Witt & Schild 1988] A. N. Witt et R. E. Schild. *Hydrogenated amorphous carbon grains in reflection nebulae*. ApJ, vol. 325, pages 837–845, Février 1988. (Cité en pages 35 et 126.)
- [Witt & Vijh 2004] A. N. Witt et U. P. Vijh. *Extended Red Emission : Photoluminescence by Interstellar Nanoparticles*. In A. N. Witt, G. C. Clayton et B. T. Draine, éditeurs, *Astrophysics of Dust*, volume 309 of *Astronomical Society of the Pacific Conference Series*, pages 115–+, Mai 2004. (Cité en page 35.)
- [Witt et al. 1998] A. N. Witt, K. D. Gordon et D. G. Furton. *Silicon Nanoparticles : Source of Extended Red Emission ?* ApJ, vol. 501, pages L111+, Juillet 1998. (Cité en page 35.)
- [Witt et al. 2006] A. N. Witt, K. D. Gordon, U. P. Vijh, P. H. Sell, T. L. Smith et R.-H. Xie. *The Excitation of Extended Red Emission : New Constraints on Its Carrier from Hubble Space Telescope Observations of NGC 7023*. ApJ, vol. 636, pages 303–315, Janvier 2006. (Cité en pages 35 et 150.)
- [Witt et al. 2008] A. N. Witt, S. Mandel, P. H. Sell, T. Dixon et U. P. Vijh. *Extended Red Emission in High Galactic Latitude Interstellar Clouds*. ApJ, vol. 679, pages 497–511, Mai 2008. (Cité en pages 33, 144 et 150.)
- [Witt et al. 2009] A. N. Witt, U. P. Vijh, L. M. Hobbs, J. P. Aufdenberg, J. A. Thorburn et D. G. York. *The Red Rectangle : Its Shaping Mechanism and Its Source of Ultraviolet Photons*. ApJ, vol. 693, pages 1946–1958, Mars 2009. (Cité en pages 35 et 150.)
- [Wolff et al. 1997] M. J. Wolff, G. C. Clayton, S.-H. Kim, P. G. Martin et C. M. Anderson. *Ultraviolet Interstellar Linear Polarization. III. Features*. ApJ, vol. 478, pages 395–+, Mars 1997. (Cité en page 37.)
- [Wooden et al. 1993] D. H. Wooden, D. M. Rank, J. D. Bregman, F. C. Witteborn, A. G. G. M. Tielens, M. Cohen, P. A. Pinto et T. S. Axelrod. *Airborne spectrophotometry of SN 1987A from 1.7 to 12.6 microns - Time history of the dust continuum and line emission*. ApJS, vol. 88, pages 477–507, Octobre 1993. (Cité en page 38.)
- [Wright et al. 1996] G. S. Wright, A. Bridger, T. R. Geballe et Y. Pendleton. *Studies of NIR dust absorption features in the nuclei of Active and IRAS galaxies*. In D. L. Block & J. M. Greenberg, éditeur, *New Extragalactic Perspectives in the New South Africa*, volume 209 of *Astrophysics and Space Science Library*, pages 143–+, 1996. (Cité en page 52.)
- [Xu et al. 1993] S. Xu, M. Hundhausen, J. Ristein, B. Yan et L. Ley. *Influence of substrate bias on the properties of a-C :H films prepared by plasma CVD*. Journal of Non-Crystalline Solids, vol. 164-166, no. Part 2, pages 1127 – 1130, 1993. Proceedings of the Fifteenth International Conference on Amorphous Semiconductors-Science and Technology. (Cité en pages 138, 139, 140, 144, 145, 153 et 154.)

- [Yoshimi *et al.* 1992] M. Yoshimi, H. Shimizu, K. Hattori, H. Okamoto et Y. Hamakawa. Amorphous carbon basis blue light electroluminescent device. *Optoelectronics*, vol. 7, pages 69–81, June 1992. (Cité en pages 138 et 139.)
- [Zhang *et al.* 2005] Q. Zhang, T. R. Hunter, J. Brand, T. K. Sridharan, R. Cesaroni, S. Molinari, J. Wang et M. Kramer. *Search for CO Outflows toward a Sample of 69 High-Mass Protostellar Candidates. II. Outflow Properties*. *ApJ*, vol. 625, pages 864–882, Juin 2005. (Cité en page 76.)
- [Zhukovska *et al.* 2008] S. Zhukovska, H.-P. Gail et M. Trieloff. *Evolution of interstellar dust and stardust in the solar neighbourhood*. *A&A*, vol. 479, pages 453–480, Février 2008. (Cité en page 39.)
- [Ziegler *et al.* 2010] J. F. Ziegler, M. D. Ziegler et J. P. Biersack. *SRIM - The stopping and range of ions in matter (2010)*. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, vol. 268, pages 1818–1823, Juin 2010. (Cité en page 165.)
- [Zou *et al.* 1988] J. W. Zou, K. Schmidt, K. Reichelt et B. Stritzker. *The effect of heavy-ion bombardment on the properties of hard a-C:H (i-C) films*. *Journal of Vacuum Science Technology*, vol. 6, pages 3103–3104, Novembre 1988. (Cité en pages 160, 174, 175, 230 et 231.)
- [Zubko *et al.* 2004] V. Zubko, E. Dwek et R. G. Arendt. *Interstellar Dust Models Consistent with Extinction, Emission, and Abundance Constraints*. *ApJS*, vol. 152, pages 211–249, Juin 2004. (Cité en page 18.)



---

## Hydrogenated amorphous carbons : observations, synthesis and characterisation in laboratory of interstellar dust

**Abstract :** The hydrogenated amorphous carbons (a-C:H or HAC) are an important component of interstellar dust. These hydrocarbon grains are observed through IR absorption bands at 3.4, 6.9 and 7.3  $\mu\text{m}$ , due to aliphatic C-H bond vibrations. Their spectral signatures are detected in the diffuse interstellar medium along several sight lines in the Milky Way and in many external galaxies. This thesis deals with the study of such interstellar a-C:H, both through their astrophysical observation and the synthesis and characterisation of laboratory analogues.

A first part of this PhD work concerns the 3.4  $\mu\text{m}$  band observation in the galactic diffuse interstellar medium in the direction of IRAS 18511+0146 source. The C-H stretching mode absorption band detected toward several lines of sight of this cluster has the strongest optical depths observed in the Milky Way outside the galactic center. Different interpretations for this deep absorption band in this direction are discussed.

Analogues of the amorphous carbonaceous dust component have been produced in the laboratory with a plasma source. Their IR spectra are in excellent agreement with the absorption bands observed in the diffuse interstellar medium. The samples have been characterised by UV-visible and IR absorption spectroscopy.

Since a-C:H emit a visible radiation when they absorb UV or visible photons, a systematic study of this photoluminescence is performed. For the first time, the absolute and intrinsic photoluminescence yield of a-C:H is measured for a broad range of excitation wavelengths. The photoluminescence properties of a-C:H is compared to observations of the Extended Red Emission, a large interstellar emission band whose carriers are not identified.

To infer the influence of cosmic rays on this carbonaceous dust, the produced analogues have been irradiated by different swift ions, similar to interstellar cosmic rays. The induced modifications have been monitored by their IR spectrum. The a-C:H dehydrogenation is observed through the progressive disappearance of the aliphatic C-H bands. Its analysis allows us to deduce the evolution of the a-C:H dust and its spectral signatures under cosmic ray exposition. The destruction due to cosmic rays is compared to the effects induced by exposure to UV photons and hydrogen atoms, in order to interpret the evolution of the absorption band at 3.4  $\mu\text{m}$  observed in the diffuse interstellar medium, but not in dense clouds.

**Keywords :** Interstellar dust analogs, hydrogenated amorphous carbons, IR and UV-visible spectroscopy, photoluminescence, ERE, ionic irradiation, cosmic ray, IRAS 18511+0146.

---

---

## Les carbones amorphes hydrogénés : observations, synthèse et caractérisation en laboratoire de poussières interstellaires

**Résumé :** Les carbones amorphes hydrogénés (a-C:H ou HAC) constituent une composante importante de la poussière interstellaire. Ces grains hydrocarbonés sont observés au travers de bandes d'absorption IR à 3.4, 6.9 et 7.3  $\mu\text{m}$ , caractéristiques des vibrations des liaisons C-H aliphatiques. Leurs signatures spectrales sont détectées dans le milieu interstellaire diffus de différentes lignes de visée de la Voie Lactée, mais aussi de nombreuses autres galaxies. Cette thèse porte sur l'étude de ces a-C:H interstellaires, à la fois au travers d'observations de ces poussières, et grâce à la synthèse et la caractérisation d'analogues de laboratoire.

Une première partie de mon travail de thèse est consacrée à l'observation de la bande à 3.4  $\mu\text{m}$  des a-C:H du milieu interstellaire diffus galactique en direction de la source IRAS 18511+0146. La bande d'absorption des modes d'élongation C-H détectée dans cette direction, vers différentes lignes de visée proches les unes des autres, présente des profondeurs optiques similaires et les plus fortes observées dans la Voie Lactée en dehors du centre galactique. Différentes interprétations de la profonde bande dans cette direction sont discutées.

Des analogues de ces poussières carbonées aliphatiques ont été synthétisés en laboratoire, sous forme de films, grâce à un plasma, et reproduisent bien les bandes IR observées dans le milieu interstellaire diffus. Ces échantillons ont été caractérisés par spectroscopie d'absorption dans l'UV-visible et l'IR.

Puisque les a-C:H émettent un rayonnement visible après absorption de photons UV ou visibles, une partie de la thèse est consacrée à une étude systématique de cette photoluminescence. Pour la première fois, les rendements absolus et intrinsèques de photoluminescence d'a-C:H sont déterminés pour une large gamme de longueurs d'onde d'excitation. Les propriétés de la photoluminescence des a-C:H sont confrontées aux observations de l'Emission Rouge Etendue, une large bande d'émission interstellaire dont les porteurs ne sont pas identifiés.

Afin de déduire l'influence des rayons cosmiques sur ces poussières carbonées, les analogues produits ont été irradiés par différents ions énergétiques dont le dépôt d'énergie est similaire à celui du rayonnement cosmique interstellaire. Les effets induits ont été suivies par IR. L'analyse de la déshydrogénation des a-C:H observée au travers de la disparition progressive des bandes des C-H aliphatiques permet de déduire l'évolution de ces poussières interstellaires et de leurs signatures spectrales sous l'effet des rayons cosmiques. La destruction induite par les rayons cosmiques est comparée aux effets de l'exposition aux photons UV et aux atomes d'hydrogène afin d'interpréter l'évolution de la bande d'absorption à 3.4  $\mu\text{m}$  observée dans le milieu interstellaire diffus, mais pas dans les nuages denses.

**Mots clés :** Analogues de poussières interstellaires, carbones amorphes hydrogénés, spectroscopie IR et UV-visible, photoluminescence, ERE, irradiation ionique, rayons cosmiques, IRAS 18511+0146.

---